



# Elaboration, caractérisation et modélisation de transistors à base de pentacène. Applicationaux circuits électroniques organiques

Ahmad Skaiky

## ► To cite this version:

Ahmad Skaiky. Elaboration, caractérisation et modélisation de transistors à base de pentacène. Applicationaux circuits électroniques organiques. Sciences de l'ingénieur [physics]. université de Limoges, 2013. Français. NNT : . tel-01281789

**HAL Id: tel-01281789**

**<https://hal.science/tel-01281789>**

Submitted on 2 Mar 2016

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITE DE LIMOGES  
ECOLE DOCTORALE Science – Technologie – Santé  
FACULTE des Sciences et Techniques de Limoges  
XLIM – Département MINACOM

Thèse N° 18/2013

Thèse  
pour obtenir le grade de  
**Docteur de l'Université de Limoges**

Discipline : Sciences et Ingénierie pour l'Information (S2I)

Présentée et soutenue par

**Ahmad SKAIKY**

**Elaboration, caractérisation et modélisation de transistors  
à base de pentacène. Application aux circuits électroniques  
organiques.**

Thèse dirigée par M. Bruno LUCAS et M. Thierry TRIGAUD

Le 27 juin 2013

**JURY :**

***Rapporteurs :***

**M. Louis GIRAUDET**

***Professeur, LRN – Reims***

**M. François OLIVIÉ**

***Professeur, LAAS – Toulouse***

**Examineurs :**

**M. Bruno LUCAS**

***Maître de conférences, HDR – XLIM Limoges***

**M. Bernard RATIER**

***Professeur – XLIM Limoges***

**M. Olivier SIMONETTI**

***Maître de conférences, LRN – Reims***

**M. Thierry TRIGAUD**

***Maître de conférences – XLIM Limoges***



# Remerciements

Le travail présenté dans cette **thèse** a été effectué au sein du laboratoire **XLIM-MINACOM** de l'**Université de Limoges**.

Ce travail a été effectué sous la direction de **M. Bruno LUCAS** (Maitre de conférences, HDR), et **M. Thierry TRIGAUD** (Maître de conférences) au laboratoire XLIM-MINACOM de l'université de Limoges. Je tiens à exprimer tous mes remerciements pour leur aide, leurs expériences, leur analyse critique de mon travail lors des nombreuses et fructueuses discussions et je leur exprime ma sincère reconnaissance pour leur disponibilité et pour leurs qualités scientifiques et humaines.

J'adresse également mes sincères remerciements à **M. Louis GIRAUDET** Professeur à l'université de Reims et à **M. François OLIVIÉ** professeur à l'université Paul Sabatier de Toulouse pour avoir accepté de juger ce travail en tant que rapporteurs.

J'exprime mes remerciements aussi à **M. Bernard RATIER** et **M. Olivier SIMONETTI**, d'avoir accepté d'être les examinateurs de ma thèse.

D'une manière générale, j'adresse mes remerciements à tous les membres de l'équipe « Optoélectronique plastique », pour leur accueil, leur disponibilité et pour l'ambiance chaleureuse qui y règne.

Pour finir, je tiens à remercier toute ma famille et particulièrement mes parents, Mme Nadia KHEICHECH et M. Ali SKAIKY, qui m'ont toujours encouragé au cours de mes études.



## Sommaire

<b>Introduction Générale.....</b>	<b>1</b>
<b>Chapitre I: Propriétés physiques et de transport dans le pentacène. ....</b>	<b>3</b>
<b>I. Introduction :.....</b>	<b>5</b>
<b>II. Structures expérimentales étudiées : ITO/Pentacène (Pn)/Al.....</b>	<b>6</b>
II.1. L'anode : ITO.....	6
II.2. Dépôt en phase vapeur du Pentacène : .....	7
II.3. La cathode : Al .....	8
<b>III. Méthodes de caractérisations utilisées :.....</b>	<b>9</b>
III.1. Banc expérimental pour les mesures électriques : $J = f(V)$ .....	9
III.2. Banc expérimental pour les mesures diélectriques: .....	10
III.3. Principe de la mesure de spectroscopie d'impédance.....	11
<b>IV. Propriétés morphologique, cristalline et optique du pentacène [1].....</b>	<b>13</b>
IV.1. Analyses AFM et diffraction par rayon X : .....	13
IV.2. Détermination de l'énergie du gap du pentacène ( $E_g$ ) à partir de la mesure du coefficient d'absorption ( $\alpha$ ) : .....	15
<b>V. Propriétés électriques et de transport du pentacène :.....</b>	<b>16</b>
V.1. Rappels sur les principaux mécanismes d'injections et de transport.....	16
V.2. Analyse par caractérisation $I=f(V)$ .....	21
V.3. Analyse par spectroscopie d'impédance de la structure ITO/Pn(100nm)/Al. Détermination pratique de la mobilité des porteurs .....	29
<b>VI. Références Bibliographiques.....</b>	<b>40</b>
<b>Chapitre II : Simulation de transistors organiques à base de pentacène ....</b>	<b>45</b>
<b>I. Introduction :.....</b>	<b>47</b>

<b>II. Etude préliminaire : caractérisation expérimentale de transistors organiques à base de pentacène</b>	<b>47</b>
II.1. Caractérisations électriques de transistors pour différentes épaisseurs de pentacène:	48
II.2. Effet de la longueur du canal sur les performances du transistor :	51
<b>III. Utilisation de l'outil ATLAS pour la simulation du fonctionnement des transistors organique - Validation des résultats expérimentaux</b>	<b>53</b>
III.1. Modélisation analytique du courant de drain d'un OTFT	53
III.2. Equation différentielle du courant de drain $I_{DS}$ .	54
III.3. La simulation à partir du logiciel ATLAS	61
III.4. Modèles physique utilisé dans ATLAS:	67
III.5. Le module dédié à l'électronique organique.	72
III.6. Procédure de simulation.	75
<b>IV. Conclusion</b>	<b>83</b>
<b>V. Références Bibliographiques</b>	<b>84</b>
<b>Chapitre III : réalisations et caractérisations des inverseurs organiques à base du pentacène</b>	<b>88</b>
<b>I. Introduction</b>	<b>90</b>
<b>II. Inverseurs organiques structure et mode de fonctionnement</b>	<b>90</b>
II.1. Définitions et caractéristique de transfert.	91
II.2. Inverseur pMOS à charge active saturée	92
II.3. Inverseur pMOS à charge active non saturée	94
II.4. Inverseur à charge à déplétion []	94
II.5. Inverseur à transistors complémentaires (O-CMOS)	96
<b>III. Etat de l'art sur les circuits intégrés organiques</b>	<b>97</b>
III.1. Inverseur à charge active saturée	97
III.2. Inverseur à charge à déplétion	100

III.3. Inverseur à transistors complémentaires (O-CMOS).....	105
<b>IV. Réalisation d'inverseurs organiques à charge active saturée.....</b>	<b>111</b>
IV.1. Réalisation de l'inverseur .....	111
IV.2. Banc de caractérisation .....	112
IV.3. Caractéristiques expérimentales des inverseurs à charge active saturée ....	112
IV.4. Réalisation d'inverseurs organiques à charge à déplétion. ....	125
<b>V. Conclusion .....</b>	<b>127</b>
<b>VI. Références Bibliographiques.....</b>	<b>128</b>
<b>Conclusion Générale .....</b>	<b>132</b>
<b>Annexe A – étude classique de l'absorption dipolaire Debye (ADD).....</b>	<b>134</b>
<b>I. Forme de la polarisation en régime continu :.....</b>	<b>136</b>
<b>II. Etude de la polarisation dipolaire en fonction du temps.....</b>	<b>136</b>
<b>III. Equations de Debye : diagramme d'Argand.....</b>	<b>137</b>
III.1. Formules de Debye : .....	137
III.2. Diagramme d'Argand (représentation de Cole et Cole). ....	138
<b>IV. Représentations pratiques.....</b>	<b>139</b>
IV.1. Le demi-cercle aplati de Cole et Cole.....	139
IV.2. L'arc oblique de Cole – Davidson. ....	140
<b>V.. Discrimination pratique de l'influence de la conductivité due à des charges libres sur les pertes diélectriques d'origines dipolaire.....</b>	<b>141</b>



## Listes des figures

### Chapitre I : propriétés physiques et de transport dans le pentacène

**Figure 1 :** Étape de gravure de l'ITO.

**Figure 2a :** Unité moléculaire du pentacène (molécule constituée de cinq cycles benzéniques:  $C_{22}H_{14}$ ).

**Figure 2b :** Procédé de dépôt par évaporation.

**Figure 3 :** Schéma de configuration des échantillons pour les mesures électriques et diélectriques.

**Figure 4 :** Banc de caractérisation électrique.

**Figure 5 :** Banc de caractérisation diélectrique.

**Figure 6 :** Représentation du comportement caractéristique du schéma électrique composé d'une résistance  $R_s$  en série avec une résistance  $R_p$  qui est en parallèle avec une capacité  $C_p$ .

**Figure 7 :** Images AFM 2D ( $2\mu m \times 2\mu m$ ) pour trois épaisseurs de films de pentacène (25nm, 50nm et 100nm).

**Figure 8 :** Spectres de diffraction X pour trois épaisseurs de films de pentacène (25nm, 50nm et 100nm).

**Figure 9 : a)** Coefficient d'absorption en fonction de la longueur d'onde dans la gamme 350nm–850nm. **b)** tracé de  $(\alpha h\nu)^2$  en fonction de  $h\nu$  pour trois épaisseurs de films de pentacène (25nm, 50nm et 100nm).

**Figure 10 :** Courbe en échelles logarithmiques de la densité de courant en fonction de la tension pour une structure ITO / Pn / Al.

**Figure 11 :** Courbes en échelles logarithmiques de la densité de courant en fonction de la tension paramétrées en température.

**Figure 12 :** Caractéristiques (a)  $J=f(\sqrt{E})$  et (b)  $\frac{J}{T^2}=f\left(\frac{1}{T}\right)$  qui vérifie l'effet Schottky en dehors des basses tensions et pour les plus hautes températures.

**Figure 13 :** Caractéristique en échelle logarithmiques  $\frac{J}{E}=f\left(\frac{1}{E}\right)$  qui ne vérifie pas l'effet tunnel.

**Figure 14 : (a)** caractéristiques  $J=f(\ln V)$ , **(b)** représentations de  $s=f(1/T)$  avec  $T_i=2240K$ .

**Figure 15 :** Représentation en échelles logarithmiques de la partie imaginaire de la permittivité diélectrique en fonction de la pulsation  $\omega$  pour la structure ITO / Pn (100 nm) / Al, paramétrée en tension.

**Figure 16 :** Représentation en échelle logarithmiques de la mobilité en fonction de  $\sqrt{E}$ .

**Figure 17 :** Diagramme d'Argand pour la structure ITO/Pn/Al, paramétré en température.

**Figure 18 :** Evolution de la partie réelle et de la partie imaginaire de l'impédance en fonction de la fréquence à différentes températures et sans polarisation de la structure ITO/Pn/Al.

**Figure 19 :** Représentation en échelles logarithmiques de la partie imaginaire de la permittivité diélectrique en fonction de la pulsation  $\omega$  pour la structure ITO / Pn (100nm) / Al, paramétrée en température.

**Figure 20 :** Représentation en échelle logarithmiques de la mobilité en fonction de l'inverse de la température.

### Chapitre II : simulation de transistors organiques à base de pentacène.

**Figure 1 :** Transistor organique en géométrie « top contact » ( L : longueur du canal, W : largeur du canal, d : épaisseur du semiconducteur et t : épaisseur du diélectrique).

**Figure 2a :** Représentation de  $\log(-I_{ds})= f(-V_{gs})$  pour trois épaisseurs de film de pentacène (25nm, 50nm et 100nm) à  $V_{ds}=-30V$ .

**Figure 2b :** Représentation de  $(-I_{ds})^{1/2} = f(-V_{gs})$  pour trois épaisseurs de films de pentacène (25nm, 50nm et 100nm) à  $V_{ds}=-30V$ .

**Figure 3 : a)** Masques utilisés pour réaliser le canal du semi-conducteur (50 $\mu m$ , 100 $\mu m$  et 250 $\mu m$ ), **b)** Image au microscope électronique à balayage d'un canal de 250 $\mu m$ .

**Figure 4a :** Représentation de  $(-I_{ds})^{1/2} = f(-V_{gs})$  pour trois longueurs de canal (250 $\mu m$ , 100 $\mu m$  et 50 $\mu m$ ) à  $V_{ds}=-30V$ .

**Figure 4b :** Représentation de  $\log(-I_{ds}) = f(-V_{gs})$  pour trois longueurs de canal (250µm, 100µm et 50µm) à  $V_{ds} = -30V$ .

**Figure 5 :** Conditions de polarisation, conventions d'écriture, et principe de fonctionnement d'un OTFT, ici en configuration top contact.

**Figure 6 a :** vue en coupe de la géométrie du MIS FET organique en couches minces dans la structure

bottom contact. Rappelons les définitions des paramètres essentiels :  $C_i = \frac{\epsilon_i}{t_i}$   $2K = \mu_p C_i$  où K est

appelé paramètre de technologie  $\gamma = \frac{W}{L}$  est le paramètre de dessin, W étant la dimension de la

structure selon z. Les lignes en tirets représentent la vue en coupe des surfaces équipotentiellles dans le semi conducteur.

**Figure 6b :** La charge par accumulation et par unité de surface  $Q_a(y)$  constituant le canal par accumulation a été isolée de la structure pour montrer qu'elle est une fonction linéaire de y.

**Figure 7 :** Éléments différentiels permettant de calculer le courant de drain  $I_{DS}$ . L'élément différentiel d'épaisseur dx est découpé dans la tranche située en y du canal d'accumulation d'épaisseur  $x_a(y)$ . Il donne naissance à l'élément de courant source – drain  $dI_{DS}$ .

**Figure 8 :** Forme du canal en régime de saturation. La longueur du canal est plus petite que la distance L entre source et drain. Les porteurs par accumulation franchissent la distance  $(L-L')$  par le processus d'injection.

**Figure 9.** Entrée et sortie du logiciel de simulation.

**Figure 10 :** Structure du transistor OTFT simulé par ATLAS où la longueur du canal est de 50µm, l'épaisseur de l'isolant est de 1µm et l'épaisseur de pentacène est de 50nm.

**Figure 11 :** Exemple de maillage de la structure du transistor organique.

**Figure 12 :** Caractéristiques de transfert d'OTFT obtenues à partir des caractéristiques physiques et électroniques des matériaux données par défaut dans ATLAS.

**Figure 13:** Caractéristiques de sorties d'OTFTs : expérimentale (en traits pointillés) vs. Simulation numérique (en traits plein).  $V_{GS}$  varie de 0 à -40V pour un OTFT dont le canal a une largeur  $W=4mm$  et une longueur  $L=50 \mu m$ .

**Figure 14 :** Caractéristique de sortie d'un OTFT dont la longueur de canal est de 50µm en fonction de la densité des pièges.

**Figure 15 :** Caractéristique de transfert en fonction de la longueur de canal d'un OTFT à base de pentacène Expérimentale (en traits pleine) vs. Simulation numérique (en traits pointillés).

**Figure 16 :** Représentation de  $(-I_{ds})^{1/2} = f(-V_{gs})$  pour trois épaisseurs de films de pentacène (25nm, 50nm et 100nm) à  $V_{ds} = -30V$ . Expérimentale (en traits plein) vs. Simulation numérique (en traits pointillés).

**Figure 17 :** Simulation à partir du logiciel Organic Transistor Model 0.2.9.

### Chapitre III : simulation de transistors organiques à base de pentacène

**Figure 1 :** Caractéristique de transfert d'un inverseur

**Figure 2 :** Montage pour un inverseur à charge active saturée

**Figure 3 :** Caractéristique de transfert d'un inverseur à charge active saturée

**Figure 4 :** Inverseur à charge à déplétion ou à  $V_{GS}=0$

**Figure 5 :** Caractéristique de transfert d'un inverseur à charge à déplétion.

**Figure 6 :** Schéma fonctionnel d'un inverseur de type CMOS

**Figure 7 :** Configuration et caractéristiques de transfert des inverseurs (a) à charge active saturée, (b) à décalage du point de fonctionnement.

**Figure 8 :** Caractéristiques de transfert et gain de l'inverseur.

**Figure 9 :** Caractéristique d'un inverseur à charge active saturée à double grille.

**Figure 10 :** Représentation schématique de l'inverseur proposé par Baek en structure verticale.

**Figure 11 :** Caractéristique de transfert pour un inverseur à charge à déplétion où les OTFT sont fabriqués suivant une structure verticale avec des isolants différents.

**Figure 12 :** Caractéristique de transfert d'un inverseur organique dont la tension seuil est ajustée par le métal de grille.

**Figure 13 :** Caractéristique de transfert d'un inverseur à base de pentacène (PEN) dont l'isolant est le PVP avec une épaisseur de pentacène de 25nm pour le transistor de commande et de 50nm pour le transistor de charge.

**Figure 14 :** (a) Schéma des circuits de deux inverseurs unipolaire, (b) caractéristique de transfert des inverseurs à charge saturée, (c) caractéristique de transfert des inverseurs à charge à déplétion, (d) gain en tension de l'inverseur à charge à déplétion.

**Figure 15 :** Caractéristique de transfert et gain d'un inverseur O-CMOS fabriqué à partir de monocristaux de TMPC et de PTCDI.

**Figure 16 :** Structure de l'inverseur proposé par T.H. Huang.

**Figure 17 :** Caractéristique de transfert d'inverseur O-CMOS avec une couche d'interface de permittivité élevée.

**Figure 18 :** Structure et performance des inverseurs O-CMOS réalisé par X-H Zhang.

**Figure 19 :** Schéma de l'inverseur réalisé par J.B. Kim ainsi que ses caractéristiques de transfert et ses gains en fonction de la tension de polarisation.

**Figure 20 :** Caractéristiques d'un inverseur à base de transistors ambipolaires.

**Figure 21 :** Connections et prises de contact à prévoir pour un inverseur à charge active saturée.

**Figure 22 :** Masque et vue d'un circuit inverseur réalisé sur un substrat de verre recouvert d'ITO.

**Figure 23 :** Montages avec transistors identiques.

**Figure 24 :** Caractéristique de transfert d'un inverseur à charge active saturée constitué de deux OTFT à base de pentacène et possédant des caractéristiques géométriques identiques dont  $L=50\mu m$ .

**Figure 25 :** Caractéristiques de transfert a) du transistor de charge et b) du transistor de commande de l'inverseur avec  $L=50\mu m$ .

**Figure 26 :** Caractéristiques de transfert suivant la tension de polarisation pour un inverseur à charge active saturée dont la longueur de canal est de  $50\mu m$ .

**Figure 27 :** Caractéristique de transfert d'un inverseur à charge active saturée constitué de deux OTFT à base de pentacène et possédant des caractéristiques géométriques identiques dont  $L=100\mu m$ .

**Figure 28 :** Montage inverseur avec des longueurs de canal différentes.

**Figure 29 :** Caractéristique de transfert d'inverseur à charge active saturée en fonction des longueurs de canal. Inverseur 1 :  $L_{charge} = 250\mu m$  ;  $L_{commande}=50\mu m$ . Inverseur 2  $L_{charge}= 250\mu m$  ;  $L_{commande} = 100\mu m$  et Inverseur 3  $L_{charge}= 100\mu m$  et  $L_{commande}=50\mu m$ .

**Figure 30 :** Caractéristiques de transfert des inverseurs à charge active saturée pour lesquels  $L_{\text{charge}} = 250\mu\text{m}$  et  $L_{\text{commande}} = 50\mu\text{m}$  suivant les épaisseurs relatives de pentacène.

**Figure 31 :** Topographie AFM 2D ( $2\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$ ) d'une couche de pentacène de 25 nm sublimée sur une couche isolante de PMMA. a) pour vitesse de dépôt de 6-7nm/min, b) pour un vitesse de dépôt de 3-4nm/min.

**Figure 32 :** Caractéristique de transfert d'un inverseur pour lequel la couche de pentacène a été déposée à la vitesse de 3nm/min.

**Figure 33 :** Caractéristique de transfert d'un transistor à base de pentacène pour lequel l'isolant de grille est du PVP,  $L = 250\mu\text{m}$ , et l'épaisseur de pentacène est de 50nm.

**Figure 34 :** Caractéristique de transfert de l'inverseur à charge à déplétion.

**Figure 35 :** Gain de l'inverseur à charge à déplétion.

## Introduction générale

L'utilisation du silicium est largement répandue dans la fabrication de dispositifs électroniques. Cependant le marché demande des dispositifs ayant un faible coût de fabrication et permettant la conception de dispositifs sur de grandes surfaces et sur des supports flexibles. Par conséquent, ces dix dernières années, des recherches approfondies ont été menées sur les semi-conducteurs organiques pouvant réaliser ces objectifs grâce à leurs propriétés physiques. La flexibilité mécanique de ces matériaux est en effet une caractéristique importante pour certains domaines d'application comme ceux de la santé, la sécurité, et l'affichage. De plus, les capacités électriques et chimiques des semi-conducteurs organiques en permettent l'utilisation pour fabriquer des diodes électroluminescentes (OLED), des transistors organiques à effet de champ (OTFT), et des cellules photovoltaïques organiques (OPVs). Ces propriétés intéressantes des semi-conducteurs organiques et leurs applications ont attiré l'attention de laboratoires de recherche et d'industriels du monde entier, provoquant ainsi une croissance rapide dans le domaine de l'électronique organique. Toutefois, quelques faiblesses liées aux matériaux tels que la stabilité, la faible durée de vie liée à la sensibilité à l'oxygène et l'humidité, ainsi que la faible mobilité des porteurs de charges comparée aux matériaux inorganiques, empêchent le développement à grande échelle de cette technologie.

Les transistors sont les éléments de base de tous les circuits électroniques. Ce dispositif a deux usages principaux : l'amplification du signal et la commutation dans un circuit. Dans le domaine de l'amplification de signaux, les transistors organiques sont limités à cause de leur gain, mais dans le domaine de la commutation, malgré des performances inférieures à celles des transistors classiques en terme de vitesse de commutation, de gain et de tension de seuil, les transistors organiques font leur apparition avec de nombreuses applications commerciales tels que les détecteurs optiques (phototransistors), les détecteurs chimiques (détecteurs de gaz), les transistors des commandes des écrans à matrice active, les étiquettes intelligentes (RFID identification par radio fréquence), les journaux électroniques et les circuits logiques/mémoires.

L'équipe Optoélectronique Plastique de l'institut XLIM (Université de Limoges/CNRS) de Limoges a acquis, depuis plusieurs années, une expérience dans la réalisation et les caractérisations des transistors organiques (OFET), et continue actuellement ses recherches sur l'optimisation et l'amélioration de ce type de dispositif. L'objectif de cette

thèse se décompose en deux activités. La première est la modélisation de transistors organiques à partir de logiciels commerciaux pour évaluer des grandeurs physiques difficilement accessibles expérimentalement. La seconde concerne la réalisation de circuits électroniques à base de semi-conducteurs organiques avec pour objectif précis de fabriquer et de caractériser des inverseurs.

Le travail de la thèse sera présenté sous trois chapitres :

Dans le premier chapitre, nous étudierons le transport de charges dans le pentacène. Dans un premier temps, nous étudierons les mécanismes du transport de charges dans le pentacène avec la détermination de la mobilité des charges dans le pentacène par deux techniques différentes (la spectroscopie d'impédance et la mesure du courant limité par la charge d'espace (SCLC)). Pour cela, nous commencerons par décrire les méthodes expérimentales et les techniques de mesure développées au laboratoire. Ensuite, nous présenterons des modèles physiques décrivant les phénomènes de transport de charges. Enfin, nous exposerons l'ensemble des résultats expérimentaux obtenus pour déterminer les mécanismes de volume et/ou d'interface et les paramètres physiques qui caractérisent le pentacène et qui seront utilisés plus tard dans la simulation de transistors.

Dans le deuxième chapitre, nous présenterons la simulation de transistors organiques à l'aide du logiciel ATLAS de Silvaco. Tout d'abord, nous présenterons les modèles physiques utilisés par le logiciel et le principe de fonctionnement des transistors à effet de champ organiques (OFET). Ensuite, nous décrirons l'élaboration et la caractérisation des transistors organiques et nous étudierons en particulier l'effet de la longueur du canal et de l'épaisseur de la couche active sur les caractéristiques électriques des transistors. Suite à cela, nous réaliserons la simulation de transistors organiques en nous appuyant sur les paramètres trouvés dans la première partie afin de les comparer avec les résultats expérimentaux.

Le troisième chapitre sera consacré à l'étude de l'inverseur organique à base de pentacène. Pour ce faire, nous commencerons par une étude bibliographique sur l'inverseur organique contenant un bref historique, la présentation de différents types d'inverseurs organiques, leur mode de fonctionnement et de leurs principales applications dans le domaine de l'électronique. Ensuite, nous passerons à la réalisation et à l'optimisation des inverseurs organiques en faisant varier la longueur du canal et l'épaisseur de la couche active du transistor de charges et du transistor de commande. Enfin, nous étudierons l'effet de la vitesse de dépôt de la couche active sur les caractéristiques de l'inverseur organique qui joue un rôle important.

---

---

# **Chapitre I: Propriétés physiques et de transport dans le pentacène.**

---

---





## **I. Introduction :**

La maîtrise de nouveaux matériaux a toujours constitué un événement important tant sur le plan scientifique que technologique. Ainsi, les polymères conjugués et les petites molécules organiques sont très vite apparus prometteurs dans la préparation de dispositifs tels que les diodes électroluminescentes, les transistors à effet de champ et les cellules photovoltaïques. Cependant, la mobilité dans les polymères demeure très faible comparée à celle de leurs homologues inorganiques cristallins. La mise en œuvre de phases cristallines, quant à elle, s'avère difficile en raison de la formation de joints de grain, défauts de structure des films minces obtenus avec ce type de matériau désordonné à grande échelle, qui interrompent le transport des charges, ce qui impose bien souvent aux charges de se déplacer par sauts entre les différents domaines du matériau. On peut tout de même, dans le cas des petites molécules, obtenir des structures plus ordonnées que celles des polymères ; dans ce cas, les valeurs des mobilités peuvent atteindre le  $\text{cm}^2/\text{V.s}$ , grandeur comparable à celle du silicium amorphe.

La caractérisation des propriétés de transport de charges des matériaux semi-conducteurs organiques, avec notamment la détermination de la mobilité des porteurs de charges, constitue un point-clef dans l'étude de ces matériaux et permet d'évaluer leurs potentialités relatives en tant que couches actives dans des dispositifs optoélectroniques.

Ainsi, pour étudier les propriétés de transport du pentacène [1], nous avons utilisé deux techniques complémentaires dans la détermination de la mobilité du pentacène, d'une part, à partir de la mesure du courant limité par la charge d'espace (SCLC) et d'autre part, par un procédé moins exploré qui est la spectroscopie d'impédance. Cette dernière technique de mesure repose sur un appareillage classique et elle a déjà été employée avec succès dans le cas d'un semi-conducteur organique conventionnel, l'Alq3 [2,3]. Elle est basée sur une analyse diélectrique en fonction de la fréquence où l'on sépare les pertes dues aux charges libres des pertes diélectriques d'origine dipolaire (l'origine des dipôles est due à des électrons piégés); il est alors aisé de remonter à la valeur de la mobilité. Il est également facile de déterminer la mobilité à partir d'une caractéristique courant-tension dans le cas où le régime SCLC est mis en évidence

expérimentalement; dans ce cas, la courbe obtenue obéit à la loi de Mott-Gurney (loi en  $V^2$ ) [4].

## **II. Structures expérimentales étudiées : ITO/Pentacène (Pn)/Al**

Quelles que soient les méthodes de caractérisation utilisées pour les différentes couches organiques, les films de pentacène (Pn) seront pris en sandwich entre deux électrodes, l'une en oxyde d'indium et d'étain (ITO) et l'autre en aluminium (Al).

### **II.1. L'anode : ITO**

L'oxyde d'indium et d'étain (ITO) déposé sur un substrat de verre a été fourni par la société Visiontek avec une épaisseur de 150 nm ; sa résistance carrée est de  $12 \Omega/\square$  et sa transmittance est de l'ordre de 89 % en moyenne dans le visible. Les substrats ont une surface de 144 mm<sup>2</sup> et une épaisseur de 1,1 mm (figure 1a).

#### **II.1.1. Gravure de l'ITO**

La gravure de l'ITO permet, d'une part, d'éviter les courts-circuits entre les deux électrodes (ITO et Al) lors de la prise de contact par pointe et, d'autre part, d'obtenir un bon contact électrique au niveau de l'Al. En effet, le film d'aluminium n'est pas très adhérent sur le verre, il est sensible à la moindre rayure lors de la prise de contact par pointe. La gravure de l'ITO d'une bande de 2 mm (figure 1b) est effectuée en recouvrant les échantillons de deux couches de vernis (excepté la partie à graver), puis en les plongeant dans un bain d'acide chlorhydrique. La gravure permet d'isoler deux bandes (figure 1c): une bande qui sert d'anode, l'autre qui sert à la prise de contact de la cathode lors des tests sous pointes.

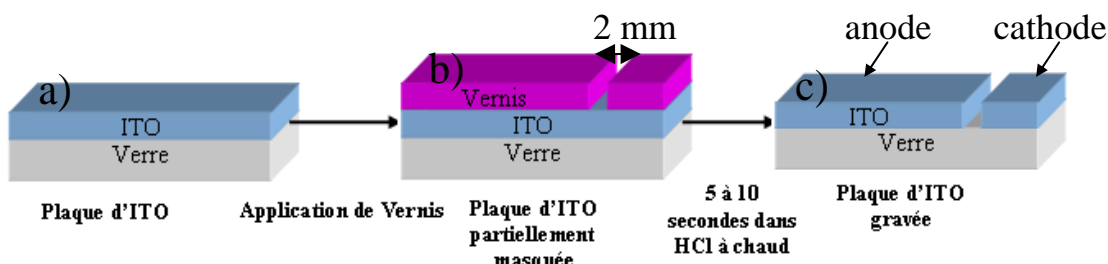


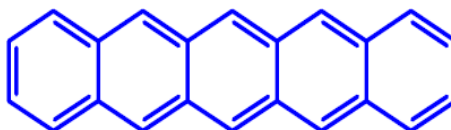
Figure 1. Étape de gravure de l'ITO.

### II.1.2. Nettoyage de l'ITO

Le nettoyage de l'ITO est nécessaire pour obtenir des surfaces reproductibles et optimisées en terme de travail de sortie [5]. La procédure utilisée dans notre laboratoire est la suivante : la surface de l'ITO est dégraissée et nettoyée de ses impuretés par deux bains successifs dans l'acétone puis l'éthanol sous ultrasons pendant 10 minutes chacun. L'échantillon est ensuite rincé avec de l'eau désionisée pendant 15 minutes puis séché sous un flux d'azote.

## II.2. Dépôt en phase vapeur du Pentacène :

Le pentacène (Pn) est un semi-conducteur de type p, appartenant à la famille des hydrocarbures aromatiques polycycliques et formé de cinq noyaux benzéniques (figure 2a). C'est une molécule conjuguée dont le mode d'assemblage dans l'état solide conduit à des matériaux très ordonnés pouvant aller jusqu'au monocristal [6] ; c'est un matériau prometteur dans la réalisation de transistor à effet de champ organique car il présente des propriétés de transport intéressantes (avec des mobilités pouvant être supérieures à  $1 \text{ cm}^2/\text{V.s}$ ).



**Figure 2a.** Unité moléculaire du pentacène (molécule constituée de cinq cycles benzéniques:  $\text{C}_{22}\text{H}_{14}$ ).

Le dépôt du pentacène est réalisé par évaporation sous vide dans un bâti dédié à ce type d'application (figure 2b). Sa constitution autorise le dépôt in-situ de quatre

matériaux organiques différents par effet Joule. Le système est classiquement équipé d'une unité de pompage constituée d'une pompe à palette primaire et d'une pompe turbo moléculaire performante (débit 400 l/s) permettant d'obtenir un vide de l'ordre de  $2.10^{-6}$  mbar. Après évaporation, il va ensuite se condenser en particulier sur le substrat en formant un film homogène dont l'épaisseur est contrôlée avec une balance à quartz.

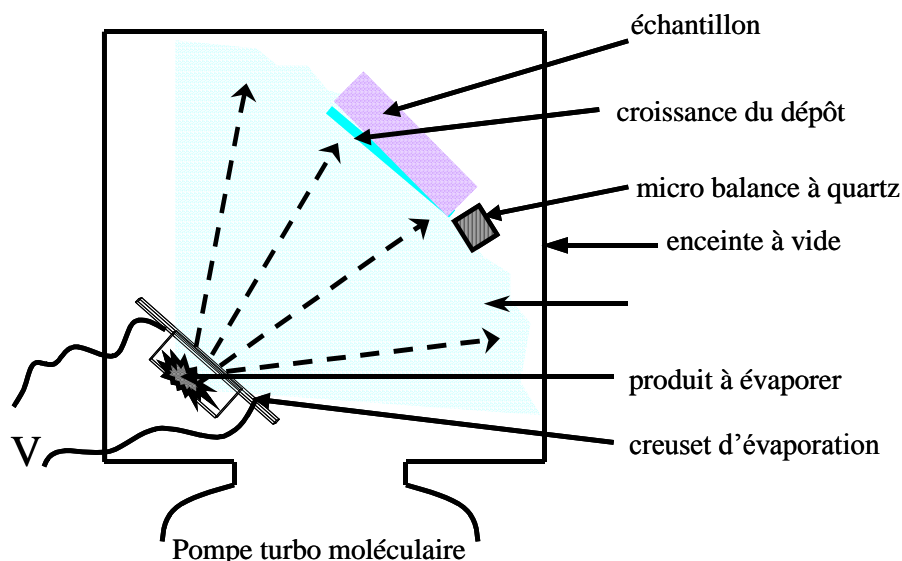


Figure 2b. Procédé de dépôt par évaporation.

### II.3. La cathode : Al

En ce qui concerne les dépôts des cathodes en aluminium de 100 nm à 200 nm d'épaisseur, ils ont été réalisés par le même procédé que la couche organique, le dépôt en phase vapeur. Le dépôt d'aluminium a été effectué à travers un masque de géométrie circulaire comme indiqué sur la figure 3 qui présente la configuration des échantillons pour les tests électriques et diélectriques de la mesure de la mobilité.

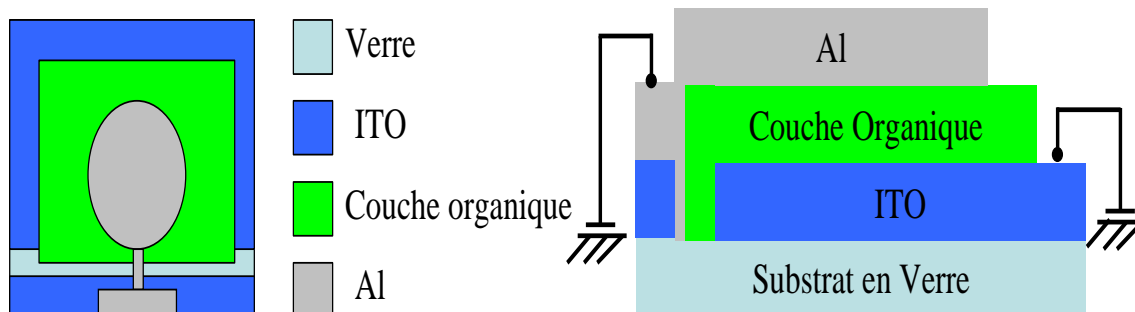


Figure 3. Schéma de configuration des échantillons pour les mesures électriques et diélectriques.

### **III. Méthodes de caractérisations utilisées :**

#### **III.1. Banc expérimental pour les mesures électriques : $J = f(V)$**

Pour déterminer la mobilité par la mesure du courant limité par la charge d'espace, nous avons utilisé le banc expérimental ci-dessous (figure 4).

Ce banc de caractérisation est composé des éléments suivants :

- Un électromètre Keithley 617, pour mesurer l'intensité  $I$  du courant dans la diode.
- Une source Thurlby Thandar Instruments (TTI) de type PL330P pour appliquer la tension et permettant d'obtenir une tension maximale de 30 V.
- Un multimètre Keithley Mx579 relié à un thermocouple (de type chromel/alumel, dont l'extrémité est en contact avec le support de l'échantillon) pour mesurer la température.
- Un alternostat pour chauffer l'échantillon.
- Un ordinateur équipé d'une interface de type IEEE permettant de contrôler la source de tension TTI et de relever l'intensité  $I$ .

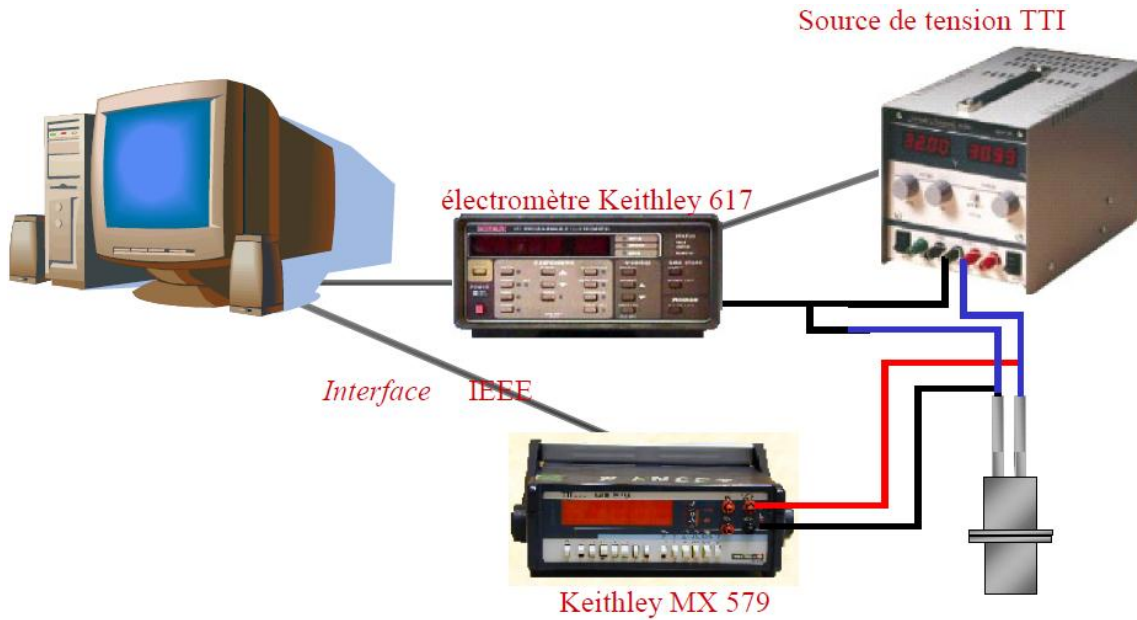


Figure 4. Banc de caractérisation électrique.

Un logiciel a été développé au laboratoire, à partir des langages Visual Basic et C++, afin de mesurer l'intensité en fonction de la tension.

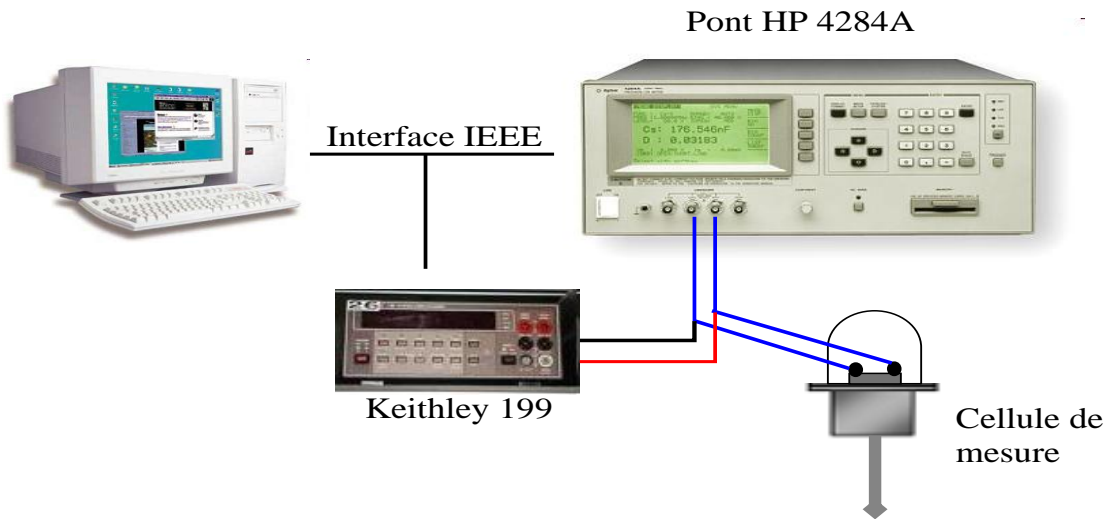
### **III.2. Banc expérimental pour les mesures diélectriques:**

Le banc de mesure (figure 5) pour la caractérisation diélectrique est composé principalement de :

- Un analyseur d'impédance HP 4284A (pont RLC) fonctionnant dans la gamme de fréquences de 20 Hz à 1 MHz, relié aux deux électrodes de l'échantillon.
- Un multimètre scanner Keithley de type 199 pour déterminer la température de l'échantillon.
- Un alternostat pour chauffer l'échantillon.
- Un ordinateur équipé d'une interface de type IEEE permettant de piloter les appareils de mesure (analyseur d'impédance et multimètre).
- Une cellule de mesure dans laquelle est inséré l'échantillon.

Le banc des caractérisations est relié à l'ordinateur via une interface IEEE. Les deux électrodes de test du pont HP, qui vont servir simultanément à appliquer un champ

électrique alternatif et continu, sont directement reliées à la cellule de mesure (par câble avec fiches BNC).



**Figure 5.** Banc de caractérisation diélectrique.

Pour cette étude, nous avons développé un programme sous LabVIEW, qui permet de programmer les différents appareils de mesure et de sauvegarder les valeurs pour l'ensemble des fréquences balayées pour chaque température et chaque tension de polarisation fixées. Ainsi, l'acquisition des données nous permettra de représenter par exemple la partie imaginaire de l'impédance en fonction de sa partie réelle, paramétrée en température (entre 170 K et 390 K) et pour une tension de polarisation donnée (entre 0 V et 16 V).

### **III.3. Principe de la mesure de spectroscopie d'impédance**

Les mesures de spectroscopie ont été effectuées avec un pont RLC (HP4284A) fonctionnant entre 20Hz et 1MHz pour déterminer l'impédance du film à caractériser. Cet analyseur d'impédance dispose de deux schémas électriques équivalents correspondant à un mode parallèle (une résistance  $R_p$  en parallèle avec une capacité  $C_p$ ) et à un mode série (une résistance en série avec une capacité). Ayant de faibles valeurs de capacités, nos échantillons sont plus adaptés à une mesure en mode parallèle.

Les valeurs  $R_p$  et  $C_p$  nous permettent d'obtenir l'impédance électrique  $Z(\omega)$  d'un échantillon pris en sandwich entre deux électrodes métalliques, elle est donnée par la

relation :  $Z(\omega) = U/I$  où  $U$  est la tension sinusoïdale appliquée ( $U = U_0 \exp(j\omega t)$ ) et  $I$  le courant sinusoïdal résultant ( $I = I_0 \exp(j(\omega t + \Phi))$ ), telle que :

$$\frac{1}{Z} = \frac{1}{R_p} + jC_p \omega$$

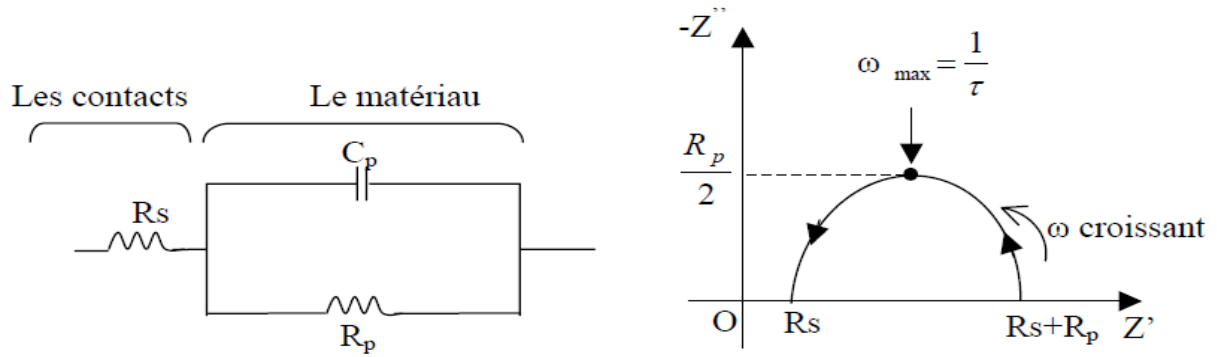
$$\text{Soit } Z(\omega) = \frac{R_p}{(1 + R_p^2 C_p^2 \omega^2)} - j \frac{R_p^2 C_p \omega}{(1 + R_p^2 C_p^2 \omega^2)} = \text{Re}(Z) + j \text{Im}(Z) = Z' + jZ''.$$

Il est toutefois trop élémentaire de représenter un diélectrique par un circuit parallèle ( $R_p//C_p$ ) dans lequel  $R_p$  serait une simple résistance. Il existe d'autres types de représentation des circuits équivalents [7] pour tenir compte du comportement réel d'un diélectrique comme nous le verrons ultérieurement.

Le schéma qui est généralement retenu pour représenter le système électrodes-matériau est donné ci-après (figure 6). Le comportement caractéristique de ce schéma est décrit par un demi-cercle dans la représentation de Cole-Cole ( $Z'' = f(Z')$ ) : la valeur minimale de  $\text{Re}(Z)$  (à haute fréquence) correspond à la résistance de contact ( $R_s$ ) et la valeur maximale de  $\text{Re}(Z)$  (à basse fréquence) représente la somme de la résistance  $R_p$  avec la résistance  $R_s$ . On définit aussi un temps de relaxation  $\tau$  qui est égal au produit  $R_p C_p$  ( $\tau = R_p C_p$ ); ainsi, en utilisant le diagramme d'Argand et la relation  $\omega_{max} = \frac{1}{\tau}$  (pulsation pour laquelle la partie imaginaire de  $Z$  est maximale), on peut déterminer les valeurs numériques des résistances et des capacités introduites dans le schéma électrique équivalent. Une autre représentation possible de la réponse d'un matériau à un courant alternatif est la permittivité  $\varepsilon(\omega)$  ( $\varepsilon(\omega) = \frac{1}{j\omega C_0 Z(\omega)}$  où  $C_0 = \frac{\varepsilon_0 S}{e}$  est la capacité de la

cellule à vide,  $\varepsilon_0$  la permittivité du vide,  $S$  la surface des électrodes, et  $e$  la distance entre les deux électrodes). C'est ce dernier formalisme que nous utiliserons dans la détermination de la mobilité par spectroscopie.





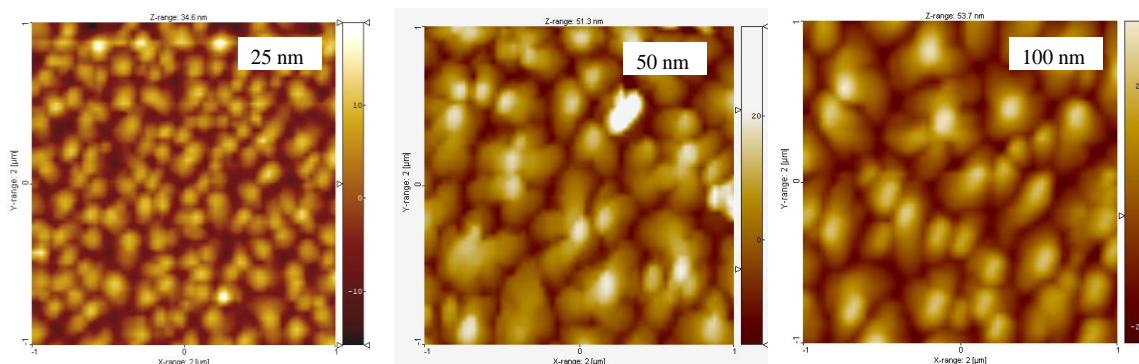
**Figure 6.** Représentation du comportement caractéristique du schéma électrique composé d'une résistance  $R_s$  en série avec une résistance  $R_p$  qui est en parallèle avec une capacité  $C_p$ .

#### **IV. Propriétés morphologique, cristalline et optique du pentacène [8]**

Des couches de pentacène d'une épaisseur de 25nm à 100nm ont été analysées par AFM et par diffraction X ; des mesures de coefficient d'absorption et d'énergie de gap ont également été effectuées.

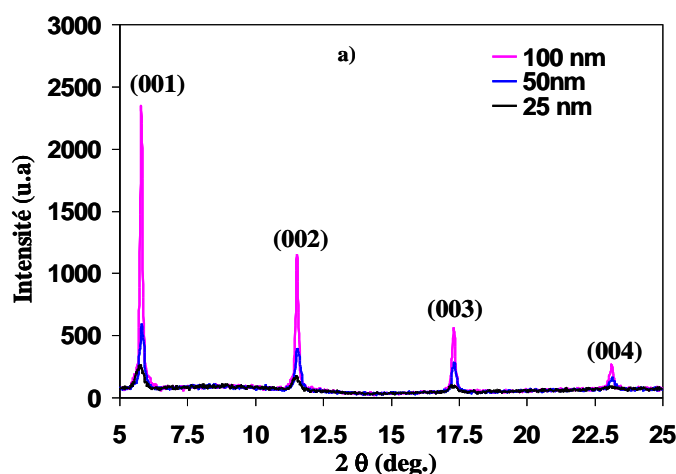
##### **IV.1. Analyses AFM et diffraction par rayon X :**

Les images AFM (figure 7) montrent la croissance et la morphologie de surface de films de pentacène d'épaisseur 25nm à 100nm. De façon générale, on observe des amas de grains de plus en plus gros en fonction de l'épaisseur du film avec une rugosité de surface qui varie de 4nm à 7,5 nm pour l'épaisseur la plus élevée. Par ailleurs, les zones inter-grains sont d'autant plus fines que la couche de pentacène est importante avec des amas de grains qui ont une forme dendritique à partir d'une épaisseur de 50nm ; cela favorise le transport des charges [9,10].



**Figure 7.** Images AFM 2D (2μm x 2μm) pour trois épaisseurs de films de pentacène (25nm, 50nm et 100nm).

L'analyse par RX (figure 8) a permis de vérifier pour l'ensemble des épaisseurs des films que les couches sont bien organisées avec des plans diffractants connus dans la littérature pour le pentacène [11] : (001) à  $2\theta=5,8^\circ$ , (002) à  $2\theta=11,5^\circ$ , (003) à  $2\theta=17,4^\circ$  et (004) à  $2\theta=23,2^\circ$ ; les films de pentacène sont polycristallins ; la phase du film fin est largement prépondérante. De plus, les mesures de diffraction X montrent que plus les films sont épais, plus la taille des grains est importante, ce qui est en parfait accord avec l'analyse AFM. A partir de l'équation de Scherrer [12], nous avons pu estimer la taille des grains dans la phase du film mince : 140nm pour une épaisseur de 100nm, 55nm pour 50nm et 30nm pour 25nm.

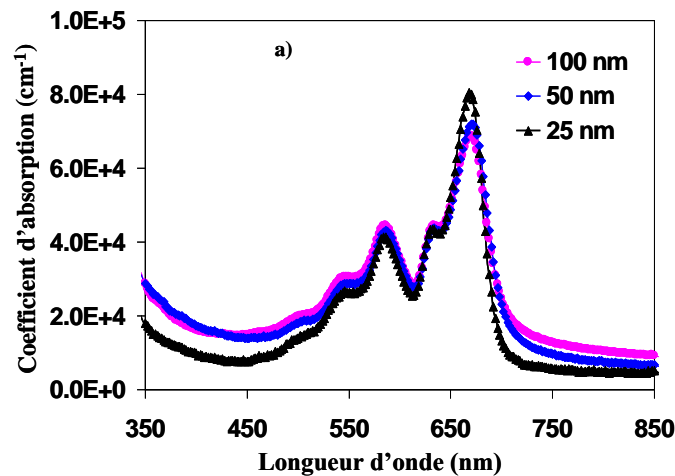


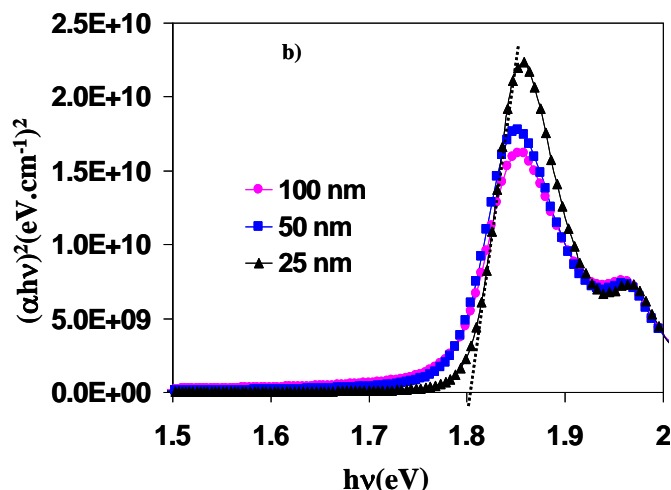
**Figure 8.** Spectres de diffraction X pour trois épaisseurs de films de pentacène (25nm, 50nm et 100nm).

## **IV.2. Détermination de l'énergie du gap du pentacène ( $E_g$ ) à partir de la mesure du coefficient d'absorption ( $\alpha$ ) :**

Nous avons calculé le coefficient d'absorption pour trois épaisseurs de films de pentacène (25nm, 50nm et 100 nm) en fonction de la longueur d'onde (de 350nm à 850nm). La figure 9a fait apparaître un coefficient d'absorption qui est sensiblement indépendant de l'épaisseur du film dans la gamme UV-visible avec un fort pic d'absorption autour de 670nm (1,85eV).

Pour calculer le gap optique  $E_g$  du pentacène, nous avons utilisé la relation de Tauc [13]. Ainsi, à partir de la valeur du coefficient d'absorption et suivant le tracé de  $(\alpha h\nu)^2$  en fonction de l'énergie des photons, nous avons déterminé le gap optique  $E_g$  : il suffit de tracer la pente dans la région d'absorption comme illustrée sur la figure 9b et l'intersection de cette droite (en pointillé) avec l'axe des abscisses (pour  $\alpha h\nu=0$ ) donne directement  $E_g$  soit environ 1,8eV pour toutes les épaisseurs de pentacène considérées ; ce résultat est identique à la valeur donnée par C.W. Chu et al. [14].





**Figure 9.** a) Coefficient d'absorption en fonction de la longueur d'onde dans la gamme 350nm–850nm. b) tracé de  $(\alpha hv)^2$  en fonction de  $hv$  pour trois épaisseurs de films de pentacène (25nm, 50nm et 100nm).

## **V. Propriétés électriques et de transport du pentacène :**

### **V.1. Rappels sur les principaux mécanismes d'injections et de transport**

Les mécanismes de transport de charges dans les matériaux organiques sont gouvernés par les processus de transport volumique, mais également par des phénomènes d'interface électrode/semi-conducteur qui peuvent générer de faibles courants.

#### **V.1.1. Mécanismes d'interface**

Parmi les modèles les plus utilisés dans la littérature [15,16,17,18,19] pour caractériser les mécanismes contrôlés par l'interface, on trouve l'émission thermoélectronique, l'effet Schottky et l'émission par effet tunnel (ou effet Fowler-Nordheim). Sous l'effet d'un champ électrique  $E$ , les charges peuvent être injectées dans la bande de conduction au-dessus de la barrière de potentiel ; dans ce cas, la densité de courant obéit à la loi de Richardson-Schottky:

$J = A^* T^2 \exp \left[ - \left( \frac{\Phi_b - \Delta\Phi}{kT} \right) \right]$  avec  $A^* = 1,6 \cdot 10^6 \text{ A.cm}^{-2}.\text{K}^{-2}$  (constante de Richardson),  $T$  la température et  $\Phi_b$  la hauteur de la barrière de potentiel (en l'absence de champ électrique). Un calcul détaillé montre que lorsque l'on applique un champ électrique, la barrière est abaissée d'une quantité  $\Delta\Phi = \left( \frac{q^3}{4\epsilon_r\epsilon_0} \right)^{1/2} \cdot E^{1/2}$  où  $\epsilon_r$  est la permittivité relative et  $q$  la charge élémentaire.

En ce qui concerne l'injection de type Fowler-Nordheim, elle ne devient significative que pour des champs très élevés qui permettent de réduire l'épaisseur de la barrière de potentiel de telle façon que l'on ait un transfert direct des porteurs au travers de la barrière par effet tunnel. Dans ce cas, la densité de courant a pour expression :

$J = A \cdot E^2 \cdot \exp \left( \frac{-B}{E} \right)$  avec  $A = \frac{q^3}{8\pi h \Phi_b}$  et  $B = \frac{8\pi\sqrt{2m^*}}{3hq} \Phi_b^{3/2}$  où  $h$  est la constante de Planck et  $m^*$  la masse effective.

### **V.1.2. Mécanismes de volume**

Lorsque la densité de courant est limitée par le volume du matériau, d'autres modèles interviennent pour caractériser les mécanismes de transport dans les matériaux organiques [20,21,22,4]. Le contact métal/semi-conducteur se comporte alors comme un réservoir de charges et la conduction est contrôlée par les propriétés volumiques du matériau : il se forme au voisinage de l'interface électrode-matériau une charge d'espace qui tend à s'opposer à l'écoulement du courant dans le matériau ; pour un champ suffisamment intense, la charge d'espace est refoulée juste à l'interface et il peut s'établir un courant.

#### **• Matériaux sans pièges:**

Si on se place dans le cas du courant limité par la charge d'espace pour une simple injection (un seul type de porteurs) et avec un matériau sans pièges, la densité de courant obéit à la loi de Mott-Gurney, notée :

$$J_{SCL} = \frac{9}{8} \epsilon_r \epsilon_0 \mu \frac{V^2}{d^3}$$

où  $\mu$  représente la mobilité des porteurs et  $d$  l'épaisseur du matériau.

- **Matériaux avec pièges:**

En fait, les solides organiques sont loin d'être parfaits, des pièges créés par différents types d'imperfection sont toujours présents dans le matériau et interagissent avec les porteurs injectés : ils contrôlent en volume le courant des porteurs et déterminent les formes des caractéristiques  $I=f(V)$ .

En présence de niveaux pièges discrets peu profonds, la loi de Mott-Gurney est modifiée pour tenir compte de la diminution de la mobilité des porteurs : les porteurs injectés se répartissent entre porteurs libres et piégés ; ce qui fait qu'en moyenne, ils présentent une mobilité effective ( $\mu_{\text{eff}} = \theta_n \mu$  avec  $\theta_n < 1$ ). L'expression de la densité de courant est alors donnée par :

$$J_{\text{sp}} = \frac{9}{8} \varepsilon \mu \theta_n \frac{V^2}{d^3} .$$

Dans le cas de niveaux pièges profonds, deux types de distribution énergétique de pièges sont généralement considérés [23,25] :

- une distribution correspondant à des niveaux discrets de pièges (liés à des imperfections de type impuretés chimiques),
- une distribution continue de pièges (liés à des imperfections de type défauts de structure) de forme gaussienne ou exponentielle.

En ce qui concerne le premier cas, la mobilité effective et le courant limité par la charge d'espace (associée essentiellement à des porteurs piégés) sont très petits dans le domaine des basses tensions. Ainsi le régime ohmique l'emporte jusqu'à ce que tous les pièges soient remplis, ce qui se produit pour une tension suffisamment élevée à partir de laquelle le courant suit la loi de Mott-Gurney.

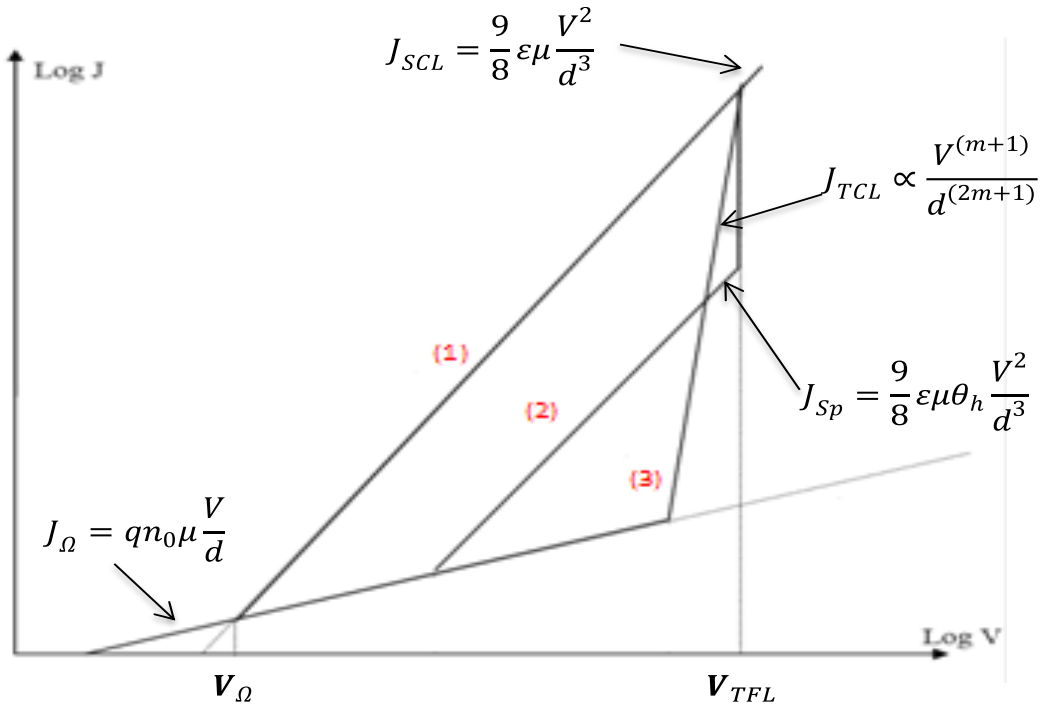
Dans le deuxième cas, quelque soit le type de distribution énergétique considérée (gaussienne ou exponentielle), l'expression du courant est proportionnelle à  $\frac{V^{m+1}}{d^{2m+1}}$ . Nous nous limiterons à donner les résultats issus de la littérature pour la distribution exponentielle : le courant limité par le remplissage des pièges, dit TCLC (Trapped Charge Limited Current) est de la forme [24]:

$$J_{TCL} = q^{(1-m)} \mu N_V \left( \frac{2m+1}{m+1} \right)^{(m+1)} \left( \frac{m}{m+1} \frac{\varepsilon}{N_t} \right)^m \frac{V^{(m+1)}}{d^{(2m+1)}}$$

où  $N_V$  est la densité de sites susceptibles de générer des porteurs et  $N_t$  la densité des pièges.

Cette relation montre que la densité de courant croît avec la tension selon une loi en puissance ( $V^{m+1}$ ) où  $m$  est caractéristique de la profondeur moyenne  $E_t$  des niveaux de pièges (repérée par rapport au bas de la bande de conduction) [25]:  $E_t = k.T_t = k.m.T$  où  $T_t$  est la constante caractéristique de la profondeur de l'énergie de piégeage.

La figure ci-après résume les différents régimes explicités précédemment dans la représentation courant-tension en échelles logarithmiques qui permet de discriminer d'une part, le régime ohmique (loi d'ohm classique :  $J_\Omega = qn_0\mu \frac{V}{d}$  avec une pente égale à 1 dans la représentation en échelle log-log) du courant limité par la charge d'espace sans pièges (région 1 avec une pente égale à 2) et avec pièges (région 2 avec une pente égale à 2), et d'autre part, le régime ohmique du courant limité par le remplissage des pièges (région 3 avec une pente supérieure à 2).



Nous donnons ci-dessous un tableau récapitulatif des équations simplifiées des différents mécanismes d'interface et de volume avec leur représentation graphique et les coefficients directeurs des droites :

	Equation simplifiée	Représentation graphique	Coefficient directeur de la droite
Effet thermoélectronique	$J \propto T^2 \exp\left(\frac{A}{T}\right)$	$\ln\left(\frac{J}{T^2}\right) = f\left(\frac{1}{T}\right)$	$A = -\frac{\phi_b}{k}$
Effet Schottky	$J \propto \exp(B \cdot \sqrt{E})$	$\ln(J) = f(\sqrt{E})$	$B = \frac{1}{kT} \left(\frac{q^3}{4\pi\epsilon}\right)^{1/2}$
Effet tunnel	$J \propto E^2 \exp\left(\frac{C}{E}\right)$	$\ln\left(\frac{J}{E^2}\right) = f\left(\frac{1}{E}\right)$	$C = -\frac{8\pi}{3} (2m)^{1/2} \frac{\phi_b^{3/2}}{h \cdot q}$
Courant SCL	$J \propto V^2$	$\ln(J) = f(\ln(V))$	2
Courant TCL	$J \propto V^{m+1}$	$\ln(J) = f(\ln(V))$	m+1 avec m ≥ 1

Dans le volume du matériau, un autre mécanisme peut intervenir, c'est l'effet Poole-Frenkel [26], qui est rattaché au mouvement des électrons issus des centres ionisables. On note que la loi de Poole-Frenkel est de la même forme que celle trouvée lors d'une émission Schottky à l'interface métal/isolant: dans les deux cas, on a une loi linéaire dans la représentation  $\ln J = f(\sqrt{E})$ . En réalité, il est difficile de dissocier les deux mécanismes bien que les pentes et l'origine physique des deux lois soient différentes. En fait, comme nous le verrons par la suite l'effet Poole-Frenkel est surtout utile pour justifier le comportement de la mobilité en présence d'un champ électrique.

Afin d'identifier le ou les mécanismes limitant la conduction dans le pentacène, nous avons réalisé la structure ITO/Pn/Al composée d'une fine couche de pentacène (d=100 nm). Ce dispositif a été caractérisé par des mesures de courant en fonction de la tension ( $I=f(V)$ ) et par la technique de spectroscopie d'impédance paramétrées en température.



## V.2. Analyse par caractérisation $I=f(V)$

L'allure de la caractéristique de la densité de courant en fonction de la tension avec des pièges distribués exponentiellement est représentée figure 10. Dans les matériaux organiques, 3 ou 4 régions apparaissent généralement et ces mécanismes sont aujourd'hui bien identifiés dans la littérature comme nous l'avons vu précédemment. Dans le cas du pentacène, nous avons identifié principalement 3 régimes sur la courbe de la figure 10 (région I, II, et III). Ainsi, on peut discerner en première approximation les régimes suivants :

- Région I ( $V < 1V$ ) : régime «ohmique» dû à des porteurs libres  $n_0$  qui ne font pas intervenir des niveaux pièges a priori ; pour des tensions suffisamment faible, la concentration des porteurs injectés reste bien inférieure à la concentration intrinsèque des porteurs et la conductivité suit la loi d'ohm classique :

$$J_{\Omega} = qn_0\mu\frac{V}{d} \text{ où } \mu \text{ est la mobilité des porteurs et } d \text{ est l'épaisseur du matériau.}$$

- Région II ( $1V < V < 2V$ ) : régime dû au courant limité par le remplissage des pièges (TCLC), qui suit une loi proportionnelle à  $\frac{V^{m+1}}{d^{2m+1}}$  où  $d$  représente l'épaisseur du film.

- Région III ( $V > 2V$ ) : régime dû au courant limité par la charge d'espace (SCLC) quand tous les pièges sont remplis ; dans ce cas, on retrouve la loi classique du courant limité par la charge d'espace (sans pièges) :

$$J_{SCL} = \frac{9}{8} \epsilon_r \epsilon_0 \mu \frac{V^2}{d^3}$$

La tension  $V_{TFL}$  qui produit le remplissage des pièges correspond à la transition du courant TCL avec des porteurs piégés vers un courant SCL avec des porteurs non piégés.

### **V.2.1. Détermination de la densité des porteurs libres, de la densité des pièges et de la mobilité :**

En fait, la caractéristique  $J(V)$  (figure 10) présente principalement trois tensions de transition,  $V_\Omega$  qui correspond à l'intersection de la loi ohmique avec la loi SCLC sans pièges (déterminée par  $J_\Omega = J_{SCL}$ ), la tension entre le régime de conduction ohmique (région I) et le régime TCLC (région II) et la tension  $V_{TFL}$  lorsque tous les pièges sont remplis (région III). La connaissance des tensions de transition  $V_\Omega$  et  $V_{TFL}$  permet de déterminer respectivement la densité  $n_0$  des porteurs générés thermiquement aux très basses tensions et la concentration de pièges  $N_t$  (plus  $V_{TFL}$  sera élevée, plus  $N_t$  sera importante).

Pour déterminer  $n_0$ , on considère que la mobilité qui intervient dans les lois  $J_\Omega$  et  $J_{SCL}$  est la même car les densités de courant correspondent à un transport sans pièges (aucun piège rempli pour  $J_\Omega$  et tous les pièges pleins pour  $J_{SCL}$ ), ce qui conduit à écrire que  $(J_\Omega)_{V=V_\Omega} = (J_{SCL})_{V=V_\Omega}$ . Cette égalité permet d'en déduire le nombre de porteurs  $n_0$  par la relation :  $n_0 = \frac{9}{8} \frac{\epsilon_r \epsilon_0}{q d^2} V_\Omega$  où  $\epsilon_r$  est la constante diélectrique et  $d$  l'épaisseur du film de pentacène. Avec  $\epsilon_r = 4$ ,  $d = 100$  nm et  $V_\Omega = 2.10^{-2}$  V, on obtient une densité de porteurs de l'ordre de  $5.10^{14} \text{ cm}^{-3}$ .

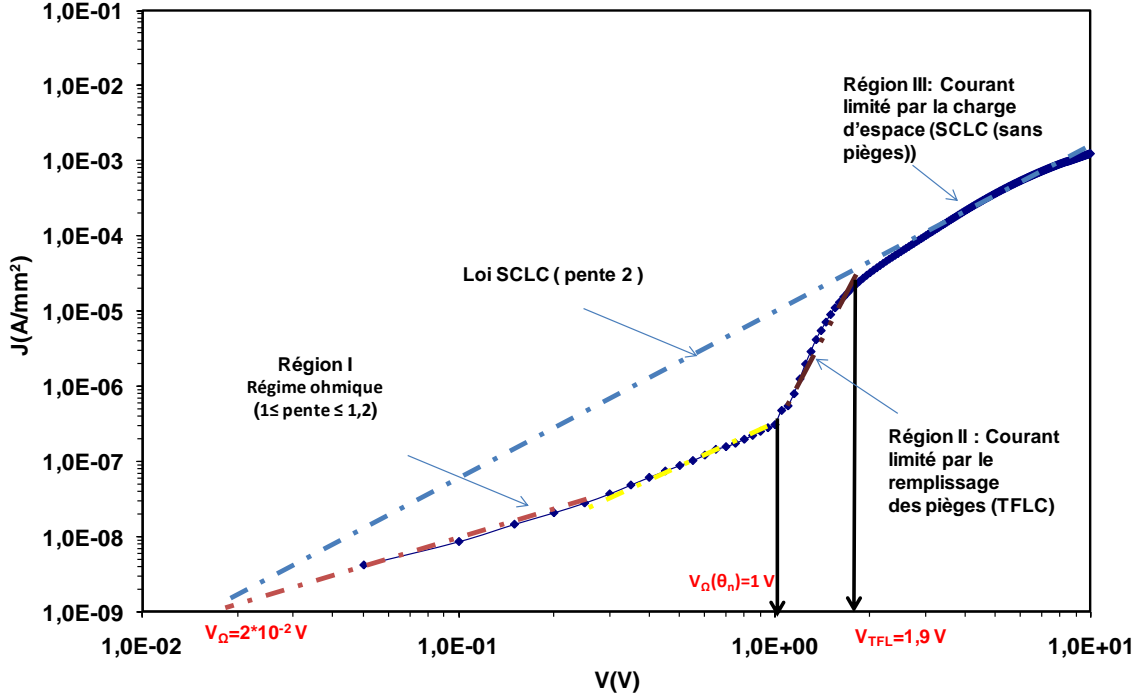
Ainsi que nous l'avons fait pour calculer  $n_0$ , on peut déterminer la densité de piège  $N_t$  à partir de la connaissance de  $V_{TFL}$  qui est la tension caractéristique de la transition du courant TCL vers un courant SCL, elle est obtenue pour  $J_{TCL} = J_{SCL}$ . Soit l'expression de  $V_{TFL}$  :

$$V_{TFL} = \frac{q \cdot d^2}{\epsilon} \left( \frac{9}{8} \frac{N_t^m}{N_V} \left( \frac{m+1}{m} \right)^m \left( \frac{m+1}{2m+1} \right)^{(m+1)} \right)^{\frac{1}{(m-1)}}$$

Avec  $\epsilon_r = 4$ ,  $d = 100$  nm,  $m = 8$ ,  $N_V \approx 10^{19}-10^{21} \text{ cm}^{-3}$  (densité de sites susceptibles de générer thermiquement des porteurs) [27] et  $V_{TFL} \approx 2$  V, on obtient une densité de pièges totale  $N_t$  de l'ordre de  $3.10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ; cette valeur sera discuté dans le chapitre II,

notamment avec le travaux rapportés par Silinsh et al [28] et Y. S. Yang et al [29] dans le cas de films de pentacène obtenus par évaporation.

Pour finir, nous avons calculé la mobilité à partir du tracé expérimental  $J(V)$  dans la région III (figure 10). Cette représentation en échelle log-log permet aisément d'en déduire la valeur de la mobilité  $\mu$  dans le régime SCLC, qui est de l'ordre de  $4.10^{-5} \text{ cm}^2/\text{V.s.}$



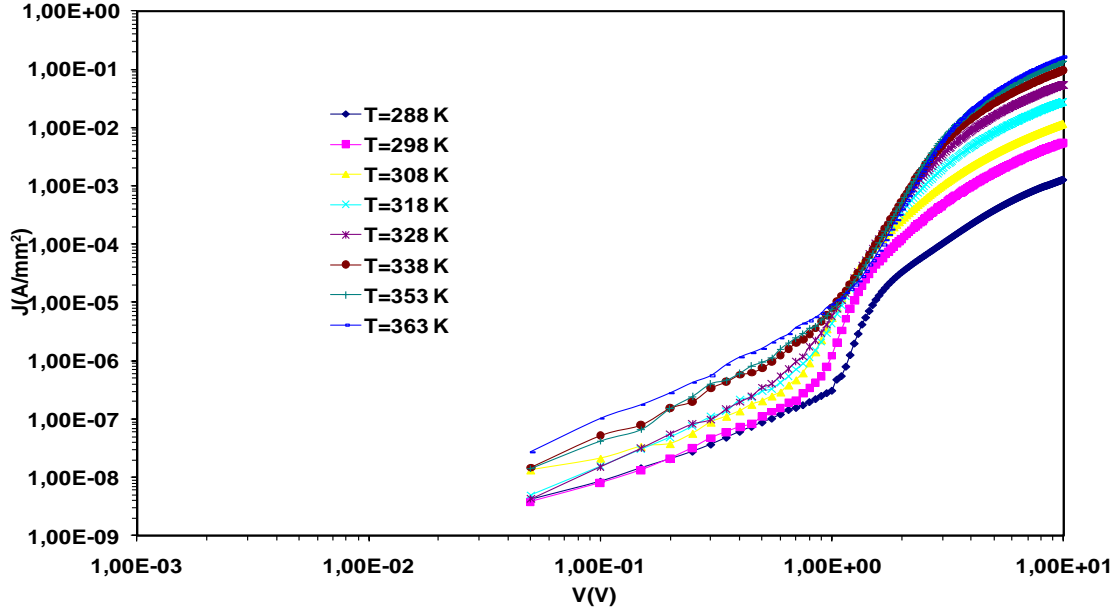
**Figure 10.** Courbe en échelles logarithmiques de la densité de courant en fonction de la tension pour une structure ITO / Pn / Al.

### V.2.2. Etude en fonction de la température:

Par ailleurs, nous avons représenté sur la figure 11, la densité de courant en fonction de la tension pour différentes températures. Seul le régime du courant limité par le remplissage des pièges présente des variations de pentes importantes avec la température : dans cette zone « non-ohmique » (régime TFLC), la pente  $m$  décroît avec les températures croissantes ( $m$  passe de 8 à 5 quand la température varie de 288K à 363K). Sachant que le produit  $m.T$  doit être sensiblement constant comme nous l'avons vu précédemment ( $m.T = \frac{E_t}{k}$ ), on peut calculer l'énergie caractéristique des pièges  $E_t$ .

Comme on a  $E_t$  suffisamment grand devant  $kT$ , les niveaux pièges sont largement répartis sous le bas de la bande de conduction.

Aux basses tensions de polarisation ( $V < 0,5V$ ), le régime linéaire observé passe d'une pente de 1 (à  $T=288K$ ) à 1,3 pour les températures les plus élevées, ce qui peut signifier que le régime ohmique est perturbé par les mécanismes aux interfaces (de type Schottky ou effet tunnel).



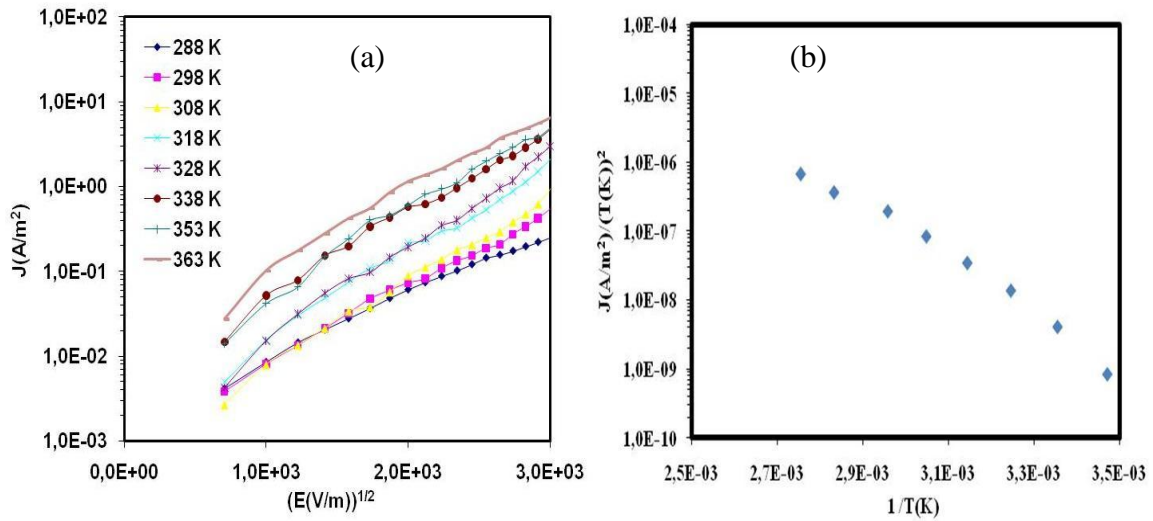
**Figure 11.** Courbes en échelles logarithmiques de la densité de courant en fonction de la tension paramétrées en température.

### V.2.2.a. Mécanismes aux interfaces

#### 1. Effet Schottky

Pour le domaine des basses tensions ( $V < 0,5V$ ), nous avons représenté figure 12a les caractéristiques en échelles logarithmiques  $J=f(\sqrt{E})$  pour différentes températures. Pour des tensions comprises entre 0,1V et 0,5V (ou  $10^6V/m$  et  $5.10^6V/m$ ), les courbes sont linéaires et semblent indiquer que le mécanisme de conduction limité par l'effet Schottky peut intervenir. De plus, ce faisceau de courbes présente sensiblement les mêmes pentes pour toutes les températures étudiées. Aux plus faibles tensions ( $V < 0,1V$ ), on s'éloigne de la droite de Schottky ; ce phénomène bien connu [22] est lié à l'apparition d'une charge d'espace à proximité de l'électrode. Pour vérifier l'effet Schottky, nous

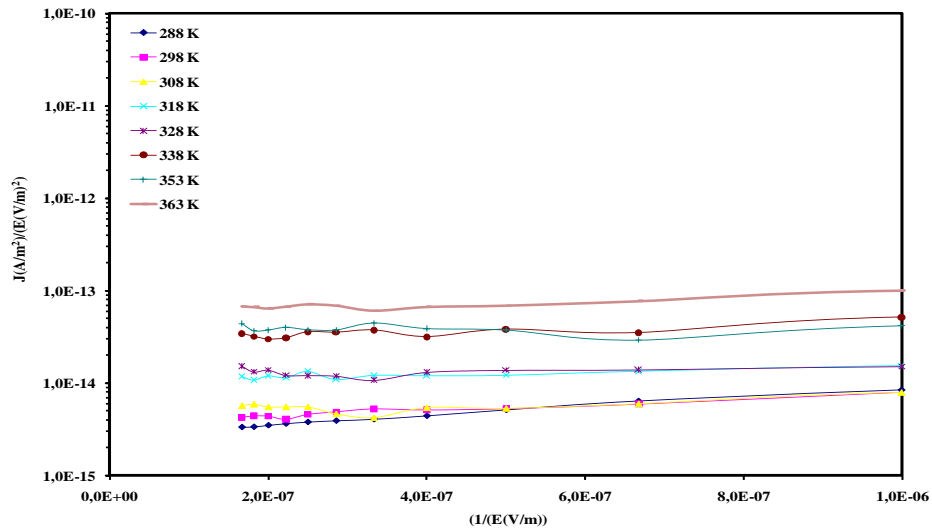
avons représenté figure 12b la densité de courant dans le modèle de l'émission thermoélectronique en l'absence de champ ( $(\frac{J}{T^2})=f(\frac{1}{T})$ ) en échelle logarithmiques). Pour des températures supérieures à 308K (pour lesquelles le régime ohmique s'écarte d'une pente de 1 (figure 11) pour atteindre une valeur de 1,3 à 363K), on note un comportement linéaire caractéristique de l'émission thermoélectronique (loi de Dushman-Richardson) ; ce qui voudrait dire que le courant résultant est dû à la contribution de deux composantes : effet Schottky et régime ohmique. Par ailleurs, à partir de la figure 12b, nous avons calculé la hauteur de la barrière de potentiel  $\phi_b$  qui intervient dans le coefficient directeur de la représentation  $(\frac{J}{T^2})=f(\frac{1}{T})$  ; elle est de l'ordre de 0,44eV. Cette faible valeur de hauteur de barrière indique que le courant ne dépend que faiblement de l'émission des électrodes et il est donc limité principalement par le volume. Par ailleurs sur le domaine de tension étudié (entre 0 et 1 V), la densité des porteurs injectés reste inférieure à celle des porteurs générés thermiquement, ce qui laisse penser que  $n_0$  peut être considéré comme sensiblement constant et que par conséquent la mobilité varie avec la température : la densité de courant augmente avec la température, donc la mobilité augmente avec la température.



**Figure 12.** Caractéristiques en échelle logarithmiques (a)  $(J)=f(\sqrt{E})$  et (b)  $(\frac{J}{T^2})=f(\frac{1}{T})$  qui vérifie l'effet Schottky en dehors des basses tensions et pour les plus hautes températures.

## 2. Effet tunnel

Pour des champs électriques de l'ordre de  $10^6$ - $10^7$  V/m, on pourrait envisager un autre processus qui correspond à un effet tunnel. Dans ce cas, la densité de courant d'émission est donnée par l'équation de Fowler-Nordheim. Ainsi, on a tracé les courbes en échelle logarithmiques  $(\frac{J}{E^2})=f(\frac{1}{E})$  paramétrées en températures, qui doivent présenter un caractère linéaire si elles sont ajustées à l'équation de Fowler-Nordheim ; la figure 13 représente ce tracé pour différentes températures. Pour les champs les plus faibles, on note un comportement linéaire ou sensiblement indépendant de l'inverse du champ électrique ; ce qui n'est pas caractéristique de l'effet tunnel qui doit présenter théoriquement une pente négative dans ce modèle d'émission. Ces résultats montrent que l'injection par effet tunnel est peu probable pour le domaine des tensions appliquées.



**Figure 13.** Caractéristique en échelle logarithmiques  $\frac{J}{E^2}=f(\frac{1}{E})$  qui ne vérifie pas l'effet tunnel.

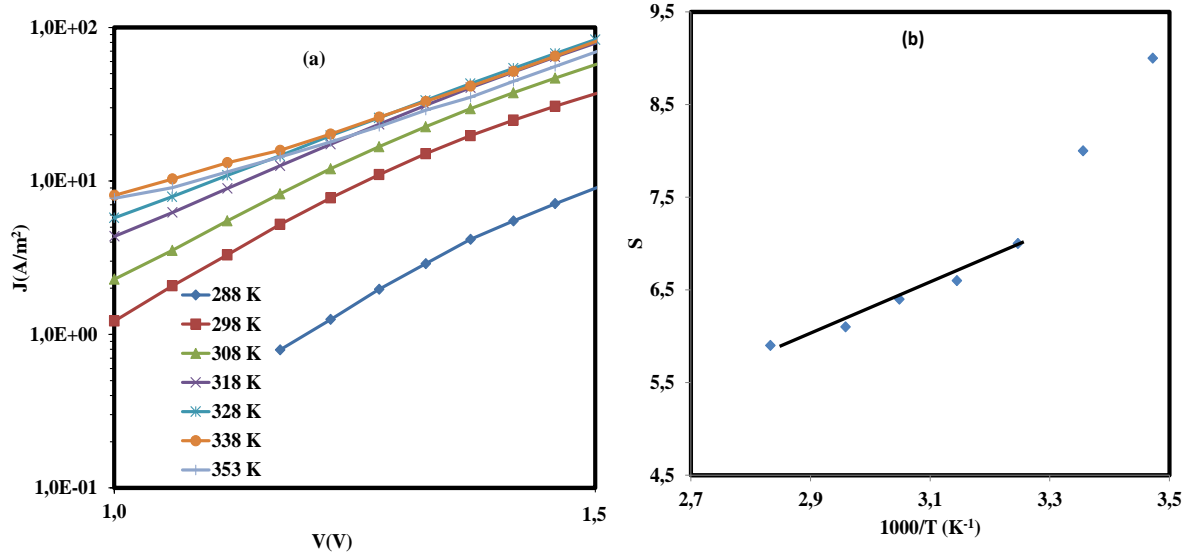
### V.2.2.b. Mécanismes avec des pièges profonds

#### 1. Distribution exponentielle de pièges

Dans le cas de pièges profonds distribués selon une loi exponentielle, l'expression de la densité de courant est de la forme :

$$J_{TCL} \propto \frac{V^{m+1}}{d^{2m+1}} \text{ qui peut aussi s'écrire : } J_{TCL} = K V^s \text{ avec } s = m+1 = T_t/T + 1 = E_t/kT + 1 .$$

Le tracé des caractéristiques en échelle logarithmiques  $J = f(V)$  pour diverses températures est donné figure 14a, on constate une bonne linéarité pour des températures supérieures à 308K et pour des tensions de polarisations comprises entre 1V et 1,5V. En accord avec l'équation précédente, la représentation  $s = f(1/T)$  est linéaire pour le domaine des hautes températures (figure 14b) ; avec une pente  $T_t = 2240$  K, on obtient  $E_t = 0,19$  eV (ordre de grandeur classique pour des niveaux de piégeage). De plus on peut noter sur la figure 14b que si on prolonge la droite, elle ne coupera pas l'axe des ordonnées (variable  $s$ ) exactement en 1 pour  $1/T = 0$ , contrairement à ce que prévoit la loi TCLC, une explication possible de cet écart peut provenir du fait qu'on ne tient pas compte ici de la dépendance de la mobilité avec le champ électrique, comme nous le verrons ultérieurement. Dans les solides organiques, la mobilité dépend du champ électrique, ce qui ne permet l'utilisation des lois SCLC et TCLC qu'en supposant que cette mobilité varie suffisamment peu pour permettre son introduction dans les expressions obtenues avec ces lois. Ici, il nous semble assez réaliste de considérer qu'à la fois l'effet de la charge d'espace et celui de la dépendance de la mobilité avec le champ électrique, affectent les caractéristiques  $J = f(V)$ . En effet, si on regarde de près les caractéristiques, on constate que les tracés effectués selon la représentation TCL ne sont pas des droites parfaites sur tout le domaine de températures étudié (pour  $T < 308$ K) : une amélioration de cette loi peut sans doute être effectuée en tenant compte de la dépendance de la mobilité avec des paramètres comme le champ électrique et la température.



**Figure 14.** (a) caractéristiques en échelle logarithmiques  $J=f(V)$  (b) représentations de  $s= f(1/T)$  avec  $T_i=2240K$ .

## 2. Quelques rappels dans le cas d'une distribution gaussienne de pièges

Le modèle du désordre gaussien est souvent utilisé dans les simulations numériques comme nous le verrons dans le chapitre II. Il est décrit par un transport par sauts intermoléculaires dans une densité d'états donnée par la relation :

$$g(E) = \frac{N_t}{\sqrt{2\pi} \sigma_t} \exp \left[ \frac{-(E-E_{tm})^2}{2\sigma_t^2} \right] \quad \text{où } E_{tm} \text{ est le niveau pour lequel la densité de pièges}$$

est la plus élevée et  $\sigma_t$  est la variance de la distribution que l'on utilise généralement pour quantifier l'amplitude du désordre.

Dans le cas des pièges profonds, le courant prend une forme semblable [30] à celui pour une distribution exponentielle :

$$J_{GAUSS} \propto q^{(1-m)} \mu \left( \frac{1}{N_t} \right)^m \exp \left( -\frac{E_t}{kT} \right) \frac{V^{(m+1)}}{d^{(2m+1)}} \quad (1)$$

$$\text{avec } m = \left[ 1 + \frac{2\pi\sigma_t^2}{16k^2T^2} \right]^{1/2}$$

Si nous voulons comparer quantitativement les deux expressions de la densité de courant pour les deux types de distributions de pièges (exponentielle et gaussienne), il faut utiliser l'expression donnée par R.S. Muller [31] pour la distribution exponentielle :



$$J_{exp} \propto q^{(1-m)} \mu \left( \frac{1}{N_t} \right)^m \exp \left( -\frac{E_c - E_h}{kT} \right) \frac{V^{(m+1)}}{d^{(2m+1)}} \quad (2)$$

En effectuant le rapport des équations (1) et (2), on obtient :

$$\frac{J_{GAUSS}}{J_{exp}} = \exp \left( -\frac{E_t}{kT} \right) \exp \left( \frac{E_c - E_h}{kT} \right) = \exp \left( \frac{E_c - E_t - E_h}{kT} \right)$$

De plus, si on se place dans le cas d'une distribution de pièges gaussienne avec le pic centré (autour de  $E_h$ ) sur le bord de la bande de conduction ( $E_h = E_c - E_t$ ), le rapport des densités de courant est alors égal à 1 et les caractéristiques  $I=f(V)$  sont formellement identiques pour les deux types de distribution. Ces calculs sont détaillés dans le chapitre II pour les simulations numériques.

### **V.3. Analyse par spectroscopie d'impédance de la structure ITO/Pn(100nm)/Al. Détermination pratique de la mobilité des porteurs**

La technique d'impédance spectroscopique employée par certains auteurs [32,33, 34,35] semble bien adaptée pour décrire la structure interne de ces composants et rendre compte du comportement des interfaces. A partir de mesures diélectriques en fonction de la fréquence, il est possible de séparer la contribution de la composante continue due à l'existence de quelques charges libres résiduelles du comportement purement diélectrique dû aux charges liées. Ainsi, l'extraction de la conductivité continue à l'aide de la représentation des pertes diélectriques en fonction de la fréquence permet d'estimer la mobilité des porteurs libres au sein du matériau qui représente une des caractéristiques les plus pertinentes pour choisir les matériaux entrant dans la réalisation de dispositifs optoélectroniques ; en effet, c'est la mobilité qui conditionne, en grande partie, le transport des charges.

#### **V.3.1. Etude en fonction du champ électrique**

Nous nous intéressons ici à l'étude de la conductivité d'un matériau due à la présence de charges libres résiduelles et de charges liées. Ainsi la conductivité résultante fait intervenir deux composantes, l'une associée à des porteurs libres (par exemple quelques électrons de la bande de conduction), et l'autre associée aux pertes diélectriques

d'origine dipolaire (l'origine des dipôles est due à des électrons piégés [36]). Les pertes dues aux seules charges libres peuvent être représentées par une composante imaginaire de la permittivité telle que  $\varepsilon''_{libres} = \gamma_0 / \omega$  avec  $\gamma_0$  correspondant à la conductivité continue qui n'est pas associée à la réponse diélectrique. Finalement, la permittivité diélectrique peut alors s'écrire [37] :

$$\varepsilon = \varepsilon' - i\varepsilon'' = \varepsilon' - i(\varepsilon''_{dipolaire} + \varepsilon''_{libres})$$

Et en utilisant les équations de la théorie de Debye [38], la permittivité est donnée par la relation (voir étude détaillée en annexe A):

$$\varepsilon = \left[ \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + \omega^2 \tau^2} - i \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \right] - i \frac{\gamma_0}{\omega}$$

où la partie imaginaire de la permittivité est:

$$\varepsilon'' = \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} + \frac{\gamma_0}{\omega} \quad (1)$$

où  $\varepsilon_s$  et  $\varepsilon_\infty$  désignent les permittivités absolues limites à basses fréquences et à hautes fréquences et  $\tau$  correspond au temps de relaxation.

Pour séparer les pertes dues aux charges libres des pertes diélectriques d'origine dipolaire, nous avons représenté, sur la figure 15, le tracé de  $\log \varepsilon''$  en fonction du logarithme de la fréquence. Cette représentation permet de distinguer facilement la conductivité alternative associée à la relaxation dipolaire de la conductivité continue  $\gamma_0$ .

En effet, de la relation (1), on peut déduire :

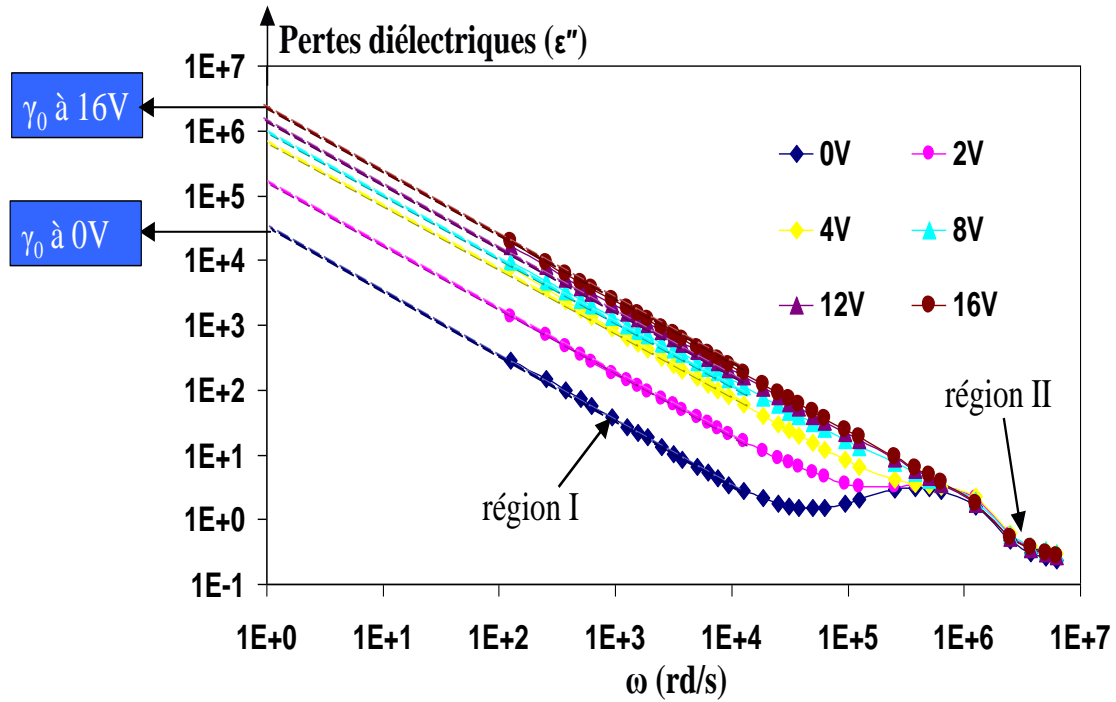
$$\text{-pour } \omega \tau \ll 1 : \log \varepsilon'' = \log \gamma_0 - \log \omega \quad (\text{région I}) \quad (2)$$

$$\text{-pour } \omega \tau \gg 1 : \log \varepsilon'' = \log \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}{\tau} - \log \omega \quad (\text{région II}) \quad (3).$$

Pour le domaine de polarisation étudié (0V à 16V), on observe de façon très distincte deux régions (I et II). Dans la région I (régime des basses fréquences), la pente du tracé  $\log \varepsilon'' = f(\log \omega)$  est égale à  $-1$  et ceci est en parfait accord avec l'équation (2) qui isole une seule composante au niveau de la partie imaginaire de la permittivité correspondant au mécanisme de conduction par porteurs libres ( $\gamma_0 = \omega \varepsilon''_{libres}$ ). De plus,

lorsque la tension de polarisation augmente, la partie imaginaire de la permittivité augmente, ce qui signifie que la conductivité continue  $\gamma_0$  augmente. Dans la région II (régime des hautes fréquences), on obtient un seul pic pour l'ensemble du domaine de polarisation qui correspond aux pertes diélectriques dans le pentacène. Ce mécanisme peut être relié au modèle du double puits de potentiel [21] ; lorsqu'un électron saute d'un site vers un autre site, le déplacement de la charge est similaire à la réorientation d'un dipôle électrique qui, dans la théorie de Debye, donne lieu à une relaxation diélectrique. Ce comportement peut donc être traité par les équations de Debye et conduit à la relaxation des porteurs de charges avec un temps de relaxation égal au temps du saut de l'électron. De plus, on peut noter que la profondeur des pièges est indépendante de la tension de polarisation car le pic reste dans une position identique lorsqu'on augmente la tension.

Par ailleurs, il est possible de déterminer la conductivité continue  $\gamma_0$  ( $\gamma_0 = \omega \varepsilon''_{\text{libres}}$ ) à partir de la représentation des courbes  $\log \varepsilon'' = f(\log \omega)$  (figure 15) par extrapolation à basses fréquences ( $\log \omega = 0$ ). Ainsi, pour chaque tension de polarisation  $V$ , on obtient une valeur de la conductivité continue qui augmente avec  $V$ ; en conséquence la mobilité augmente avec  $V$  puisqu'elle est proportionnelle à  $\gamma_0$  (la mobilité est donnée par la relation  $\mu = \frac{\gamma_0}{qn_0}$ ). Ces résultats montrent que les charges libres présentent une mobilité qui dépend précisément du champ électrique appliqué, contrairement aux charges liées (situées dans les pièges d'autant plus remplis que la tension de polarisation est élevée).



**Figure 15.** Représentation en échelles logarithmiques de la partie imaginaire de la permittivité diélectrique en fonction de la pulsation  $\omega$  pour la structure ITO / Pn (100 nm) / Al, paramétrée en tension.

Pour calculer la mobilité, nous avons donc extrait pour chaque tension de polarisation la composante continue  $\gamma_0$  ( $\gamma_0 = qn_0\mu$ ) à partir de la représentation du  $\log \epsilon'' = f \log (\omega)$ , puisque  $\gamma_0 = \omega \epsilon''$ . A titre d'exemple, pour  $V = 0$  V, l'extrapolation à  $\log \omega = 0$  conduit à une valeur de  $\epsilon'' = \epsilon_0 \epsilon_r'' = 2,6.10^{-7}$  F/m, et par conséquent à une valeur de  $\gamma_0 = 2,6.10^{-7} \Omega^{-1}m^{-1}$  soit une mobilité de l'ordre de  $3,3.10^{-5} \text{ cm}^2/V.s$  (avec le nombre de porteurs  $n_0 = 5.10^{14} \text{ cm}^{-3}$ , valeur qui a été déterminée précédemment).

Les valeurs de mobilité en fonction de la polarisation sont donc données dans le tableau ci-après :

Polarisation en V	$\varepsilon''$ (F/m)	$\gamma_0$ ( $\Omega^{-1}\text{m}^{-1}$ )	$\mu$ ( $\text{cm}^2/\text{V.s.}$ )
0	$2,6.10^{-7}$	$2,6.10^{-7}$	$3,3.10^{-5}$
2	$2,2.10^{-6}$	$2,2.10^{-6}$	$2,8.10^{-4}$
4	$7,1.10^{-6}$	$7,1.10^{-6}$	$0,9.10^{-3}$
8	$8,8.10^{-6}$	$8,8.10^{-6}$	$1,1.10^{-3}$
12	$1,7.10^{-5}$	$1,7.10^{-5}$	$2,1.10^{-3}$
16	$2,6.10^{-5}$	$2,6.10^{-5}$	$3,3.10^{-3}$

Tableau: Variation de la mobilité en fonction de la tension de polarisation.

Les résultats dans le tableau ci-dessus montrent que la mobilité dépend de la tension de polarisation appliquée ; elle a augmenté de deux ordres de grandeur pour  $V = 16 \text{ V}$ . Maintenant, nous allons vérifier qu'elle suit une loi du type Poole-Frenkel ( $\mu = \mu_0 \exp(\alpha \sqrt{E})$ ). La représentation en échelle logarithmiques de la mobilité en fonction de  $\sqrt{E}$  est donnée figure 16.

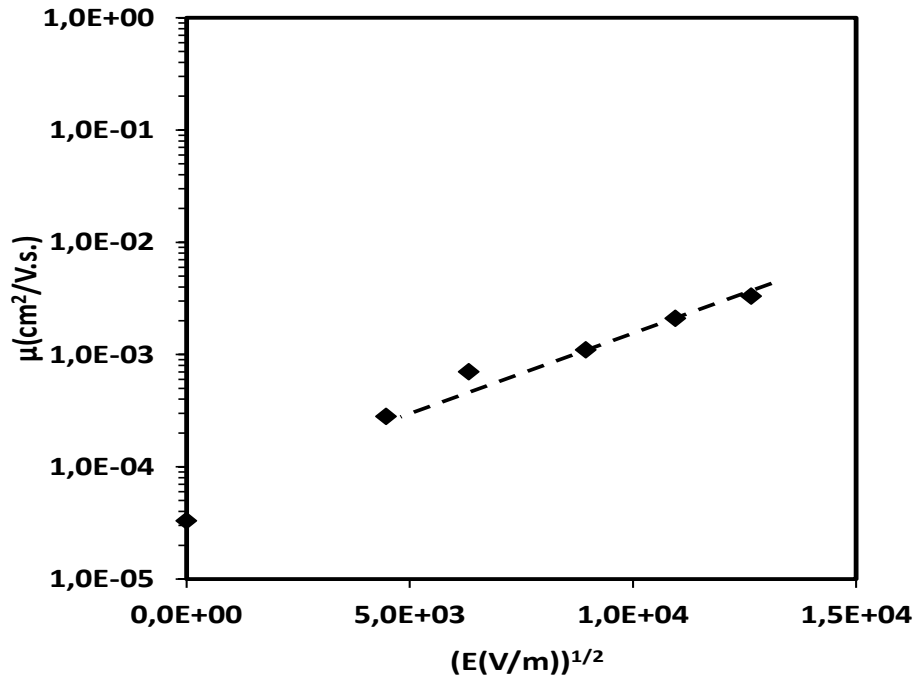


Figure 16. : Représentation en échelle logarithmiques de la mobilité en fonction de  $\sqrt{E}$ .

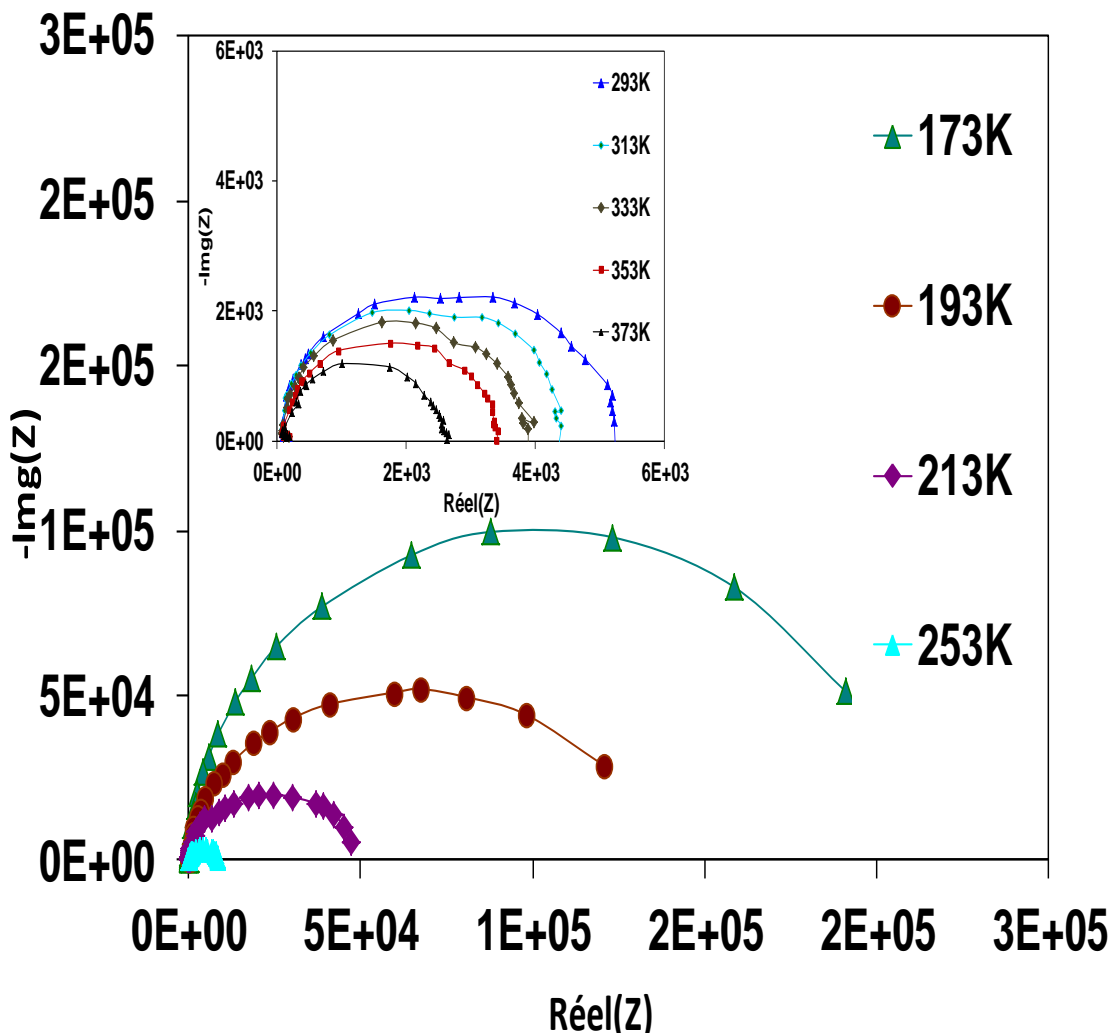
La courbe de variation de la mobilité en fonction de la racine carrée du champ électrique présente un comportement linéaire sauf dans le domaine des très basses tensions. Dans ce modèle, l'effet de la tension est d'abaisser la barrière de dépiégeage ; il en résulte donc une augmentation de la mobilité des porteurs sous l'effet de la polarisation, de façon analogue à ce que l'on observe généralement dans le cas de la mesure de la mobilité à partir des caractéristiques de transfert d'un transistor à effet de champ.

De façon globale, on peut noter que les valeurs de mobilité obtenues à partir du régime SCLC (paragraphe V.2.1.) et par spectroscopie d'impédance sont du même ordre de grandeur; de plus on a montré par spectroscopie d'impédance qu'une augmentation du champ électrique surestimait la mobilité comme dans le cas classique de la méthode par transistor à effet de champ (FET). Par ailleurs, la détermination de la mobilité par spectroscopie d'impédance ne permet pas de différencier le type de porteurs, on mesure une mobilité effective, mais comme la plupart des semi-conducteurs organiques présentent une conduction avec un type de porteurs largement majoritaires (dans le cas du pentacène, ce sont les trous), cette technique de détermination de la mobilité peut être utilisée en électronique organique.

### **V.3.2. Etude en fonction de la température**

Sur la figure 17, nous avons représenté la partie imaginaire de l'impédance en fonction de sa partie réelle pour différentes températures et sans polarisation continue superposée. Sur tout le domaine de températures étudié ( $170\text{K} < T < 400\text{K}$ ), nous obtenons un seul demi-cercle légèrement « aplati », qui est caractéristique d'un comportement diélectrique réel. En effet, dans un même matériau il existe en général plusieurs types de dipôles, avec pour chacun un temps de relaxation, ou aussi pour un seul et même dipôle plusieurs mécanismes de relaxation (liés à différentes positions d'équilibre possible pour le dipôle). Lorsque la température augmente, chaque demi-cercle voit son diamètre diminuer, et par conséquent la résistance à travers la couche active (partie réelle de l'impédance à basse fréquence) diminue rapidement. Par ailleurs, la représentation de la partie réelle et imaginaire de l'impédance en fonction de la fréquence (figure 18) pour différentes températures fait apparaître un ou plusieurs mécanismes de relaxation

matérialisés pour un ou plusieurs pics dont la position est différente pour chaque température. Dans le domaine des basses températures ( $<293\text{K}$ ), la variation thermique de la fréquence de relaxation peut présenter un comportement de type Arrhénius ( $f_r = f_0 \exp(-E_a/kT)$  où  $E_a$  correspond à l'énergie d'activation du phénomène responsable de la relaxation) puisque une seule fréquence de relaxation apparaît et elle augmente avec la température comme montré sur la figure 18.



**Figure 17.** Diagramme d'Argand pour la structure ITO/Pn/Al, paramétré en température.

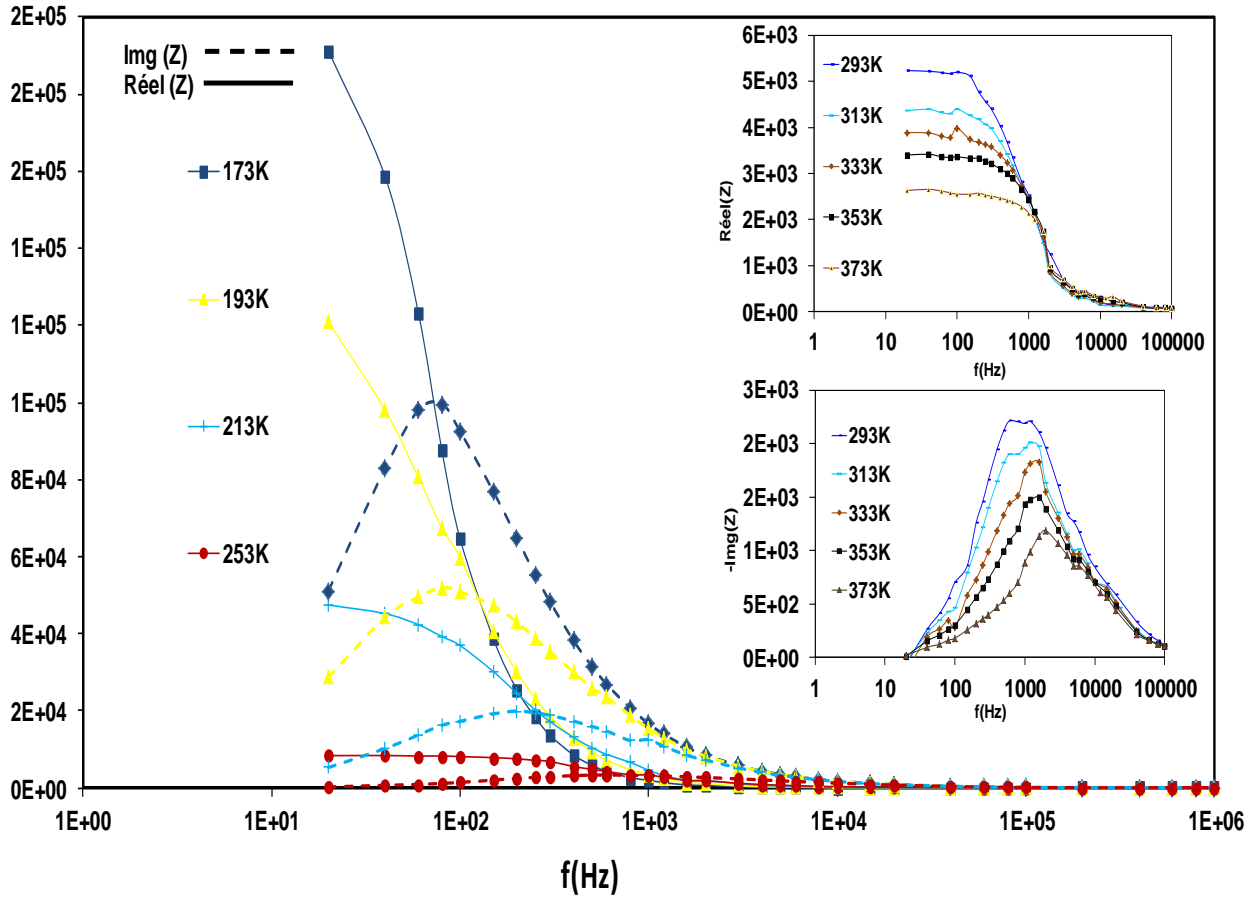
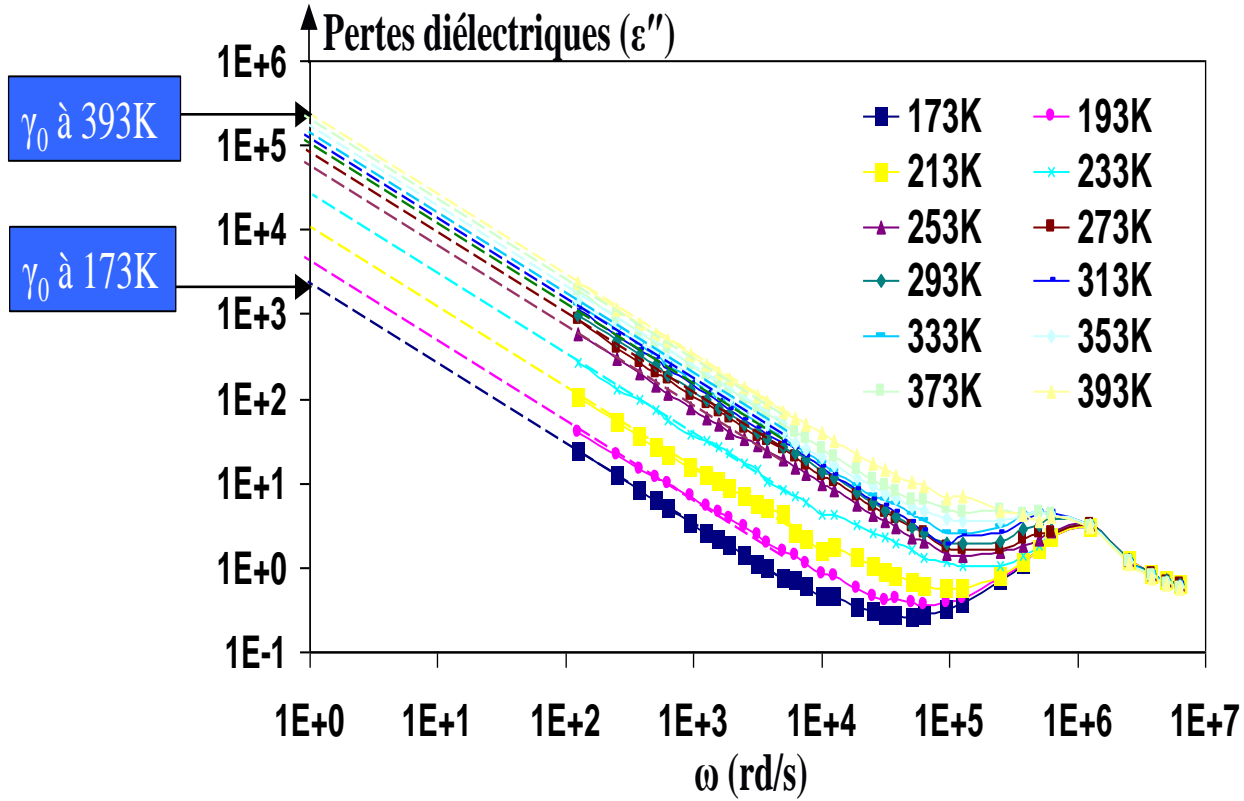


Figure 18. Evolution de la partie réelle et de la partie imaginaire de l'impédance en fonction de la fréquence à différentes températures et sans polarisation de la structure ITO/Pn/Al.

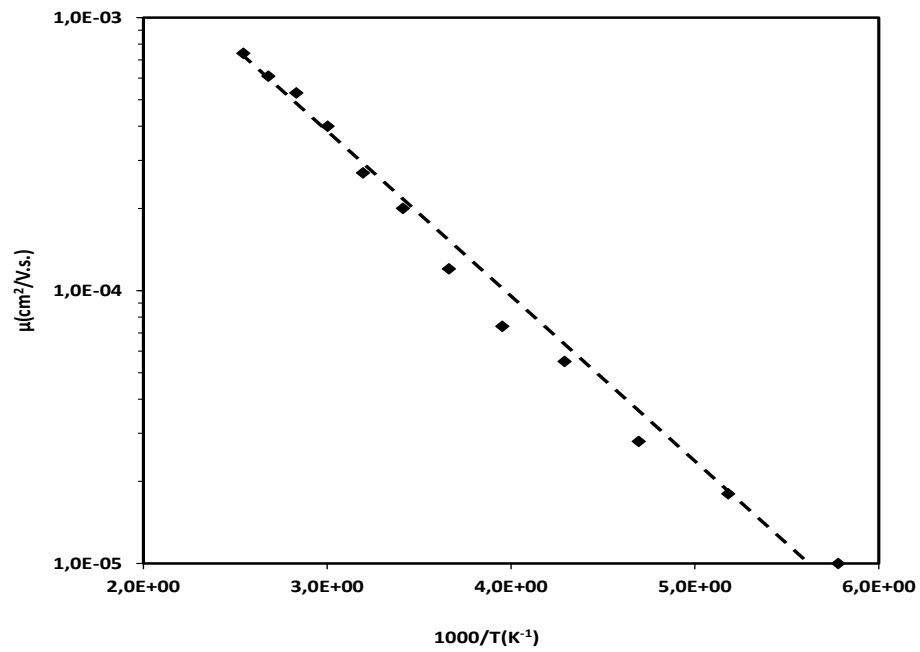
Comme la mobilité dépend généralement de la température, nous avons représenté sur la figure 19 les variations de la partie imaginaire de la permittivité diélectrique en fonction de la fréquence et paramétrées en température (de 173 K à 393 K). Nous obtenons le même comportement que précédemment (sous champ électrique), la mobilité augmente avec la température : pour  $V=0V$ , la mobilité est passée d'environ  $10^{-6} \text{ cm}^2/V.s$  (à 173 K) à  $10^{-4} \text{ cm}^2/V.s$  (à 393 K) en considérant la concentration des porteurs libres  $n_0$  sensiblement constante sur le domaine de température étudié, car comme nous l'avons vu précédemment la tension de seuil  $V_\Omega$  (dans la représentation  $I=f(V)$ ) varie peu avec l'augmentation de la température. En fait, le problème qui se pose est de connaître quel est l'effet prépondérant (charge d'espace ou dépendance de la mobilité avec la température), et dans quel domaine de température se produit chaque effet dominant.





**Figure 19.** Représentation en échelles logarithmiques de la partie imaginaire de la permittivité diélectrique en fonction de la pulsation  $\omega$  pour la structure ITO / Pn (100nm) / Al, paramétrée en température.

Dans les milieux organiques, le transport est souvent représenté par des mécanismes de saut entre divers états localisés qui sont assistés par phonons. Des mobilités associées à ce type de transport conduisent à des relations qui sont thermiquement activées ( $\mu = \mu_0 \exp(-U/kT)$  où  $U$  représente la barrière d'énergie qui sépare les états localisés). Pour illustrer les mécanismes de conduction qui existent dans les semi-conducteurs organiques, nous avons représenté sur la figure 20 l'évolution de la mobilité (en champ nul) en fonction de l'inverse de la température. Cette courbe vérifie un comportement thermiquement activé avec une énergie d'activation de l'ordre de 0,16 eV (correspond à l'ordre de grandeur de la profondeur des pièges déterminée précédemment au paragraphe V.2.2.b); la mobilité effective tient alors compte des deux types de charges libres et piégées.



**Figure 20.** Représentation en échelle logarithmiques de la mobilité en fonction de l'inverse de la température.

Pour conclure, nous résumons dans les tableaux suivants les propriétés physiques du pentacène (épaisseur de 100nm).

Propriété	Symbole	Valeur	Unité
<b>Mesure optique</b>			
Energie du gap	$E_g$	1,8	e.V
<b>Mesure I=f(V)</b>			
Concentration des porteurs	$n_0$	$5.10^{14}$	$cm^{-3}$
Densité des pièges	$N_t$	$(3\pm1).10^{17}$	$cm^{-3}$
Profondeur des pièges	$E_t$	0,19	eV
Mobilité	$\mu$	$4.10^{-5}$	$cm^2/V.s$
<b>Mesures par spectroscopie d'impédance</b>			
Constante diélectrique	$\epsilon_r$	4	
Conductivité continue	$\gamma_0$	$2,6.10^{-7}$	$\Omega^{-1}cm^{-1}$
Profondeur des pièges	$E_t$	0,16	eV
Mobilité	$\mu$	$3,3.10^{-5}$	$cm^2/V.s$

Dans le chapitre II, les résultats de simulation de transistors à base de pentacène, nécessitant l'utilisation des modules «FET et organic display», seront confrontés aux propriétés physiques du pentacène obtenues expérimentalement (densité des pièges, concentration des porteurs libres, conductivité, mobilité des porteurs en fonction de la tension de polarisation et de la température...) pour ajuster les paramètres de la simulation.

## **VI. Références Bibliographiques**

[1] B. Lucas, A. El Amrani, A. Moliton, A. Skaiky, A. El Hajj, M. Aldissi, “Charge transport properties in pentacene films: Evaluation of carrier mobility by different techniques”, *Solid-State Electronics*, 69, 99-103, (2012).

[2] A. Moliton, W. Rammal, B. Lucas, “A new method for the determination of electronic mobility in organic materials associated with optoelectronic devices”, *EuroPhysics Letters*, 72(5), (2005), 754–759.

[3] A. Moliton, B. Lucas, S. Berthon, W. Rammal, “Transport mechanisms in Alq3 electronic layers: origin and study by photodipolar absorption”, *Phil. Mag.*, 86(19), (2006), 2847–2863.

[4] NF Mott et Gurney RW, processus électroniques dans les cristaux ioniques (Oxford University Press, New York, (1940).

[5] Wassim Rammal, Réalisation de diodes électroluminescentes souples et caractérisations. Université de Limoges, Thèse N°1-2006.

[6] J. H. Schon and B. Batlogg “Trapping in organic field-effect transistor”, *J. Appl. Phys.*, 89, 1, (2001).

[7] A.K. Jonscher, *Dielectric relaxation in solids*, Chelsea Dielectric Press, London, (1983).

[8] Aumeur EL AMRANI «Etude des comportements statique et dynamique de dispositifs photo-transistor et photocoupleur organiques ». Université de Limoges, Thèse N°59-2008.

[9] A.L. Deman, J. Tardy “Stability of pentacene organic field effect transistors with a low-k polymer/high-k oxide two-layer gate dielectric”, *Materials Science and Engineering*, C26, 421, (2006).

[10] D. Knipp, R.A Street, A.R. Volkel, “Morphology and electronic transport of polycrystalline pentacene thin-film transistors”, *Appl. Phys. Lett.*, 82, 22, (2003).

- [11] M. Shtein, J. Mapel, J. B. Benziger, S. R. Forrest “Effects of film morphology and gate dielectric surface preparation on the electrical characteristics of organic-vapor-phase-deposited pentacene thin-film transistors”, *Appl. Phys.*, 81, 268, (2002).
- [12] E. Gagaoudakis, M. Bender, E. Douloufakis, N. Katsarakis, E. Natasakou, V. Cimalla and G. Kiriakidis “The influence of deposition parameters on room temperature ozone sensing properties of InOx films”, *Sensors and Actuators B*, 80 , 155, (2001).
- [13] J. Tauc and A Menth, *J. of Non-Crist. Solids*, 569, 8-10, (1972).
- [14] C.W. Chu, S.H. Li, C.W. Chen, V. Shrotiya, Y. Yamg “High-performance organic thin film transistors with metal oxide/metal bilayer electrode”, *Appl. Phys.* , 6, 925, (2006).
- [15] H. Mathieux, « *Physique des semiconducteurs et des composants électroniques* », Edition Masson, (1996).
- [16] S.M.Sze, « *Physics of semiconductors devices* », Edition J. Wiley (2007).
- [17] P.Frenkel, “On the Electrical Resistance of Contacts between Solid Conductors”, *J. Phys. Rev*, Vol 36, p 1604-1618, (1930).
- [18] J. G. Simmons,” Generalized Formula for the Electric Tunnel Effect between Similar Electrodes Separated by a Thin Insulating Film”, *J. Appl. Phys.*, , Vol 34, 6, p. 1793-1804, (1963).
- [19] R. H. Fowler, L. W. Nordheim, “Electron Emission in Intense Electric Fields”, *Proc. Roy. Soc. London*, Vol A119, p 173-181,(1963).
- [20] P. Pfüger, G. Weiser, Campbell, J. Scott, B. Steet,” Electronic structure and transport in the organic amorphous semiconductor polypyrrole ”, *Handbook of conducting polymers*, vol. 2, Dekker, chapitre 38, (1986).
- [21] A. Rose, “Space-Charge-Limited Currents in Solids”, *Phys. Rev*, 97, p.1538-1544, (1955).
- [22] M. A. Lampert, P. Mark, “Current injection in solids”, Academic Press, New York, (1970).

- [23] K. C. Kao, W. Hwang, "Electrical transport in solids", Pergamon Press,,Oxford (1981).
- [24] A. Moliton, Electronique et optoelectronique organiques, Collection Télécom, Springer, Paris, (2011).
- [25] A. Moliton, Optoelectronique moléculaire et polymère : des concepts aux composants, Collection technique et scientifique des télécommunications, Springer, Paris, (2003).
- [26] Frenkel, "On Pre-Breakdown Phenomena in Insulators and Electronic Semi-Conductors", Phys. Rev. Letters 54, p.647-648, (1938).
- [27] S. Yogev, E. Halpern, R. Matsubara, M. Matsubara, Y. Rosenwks, Physical review, B84,165124, (2011).
- [28] E.A Silinsh, G.A. Shlihta and A.J. Jurgis, "A model description of charge carrier transport phenomena in organic molecular crystals. I. polyacene crystals", Chemical Physics, 138, 347-363, (1989).
- [29] Y.S. Yang, S.H. Kim, J.I. Lee, H.Y. Chu, L.M. Do, Appl. Phys. Lett. 80, 1595, (2002).
- [30] S. Nespurek, P. Smejtek, Czech. J. Phys., B22, (1972).
- [31] R.S. Muller, Solid State Electronic, 6, 25, (1963),.
- [32] H.W. Rhee, K.S. Chin, S.Y. Oh, and J.W. Choi, "application of impedance technique OLED"thin solid films, 363, 236-239, (2000).
- [33] M. Meier, S. Karg and W. Riess, " Light-emitting diodes based on ply-p-phenylene-vinylene", J. Appl. Phys. 82, 1961-1966, (1997).
- [34] M.G. Harrison, J. Gruner and G.C.W. Spencer, "Investigations of organic electroluminescent diodes by impedance spectroscopy photo-impedance spectroscopy and modulated photovoltage spectroscopy", Synthetic matals,76, 71-75, (1996).

---

[35] S.H Kim, J.W. Jang, K.W. Lee, and S.W. Kim, “Impedance spectroscopy of a poly(p-phenylene-vinylene)- based light emitting diode device”, Solid state communications, 128, 143-146, (2006).

[36] A. Moliton, B. Lucas, S. Berthon, W. Rammal, “transport mechanism in Alq3 electronic layers : origin and study by photodipolar absorption”, Phil. Mag, 86, 19 2847-2863, (2004).

[37] A. Moliton, Applications de l’électromagnétisme dans les milieu matériels, Hermes, London-Paris (2004).

[38] A.K Jonscher, “Dielectric relaxation in solids”, Chelsea Dielectric Press, London, (1983).





---

---

## **Chapitre II : Simulation de transistors organiques à base de pentacène**

---

---



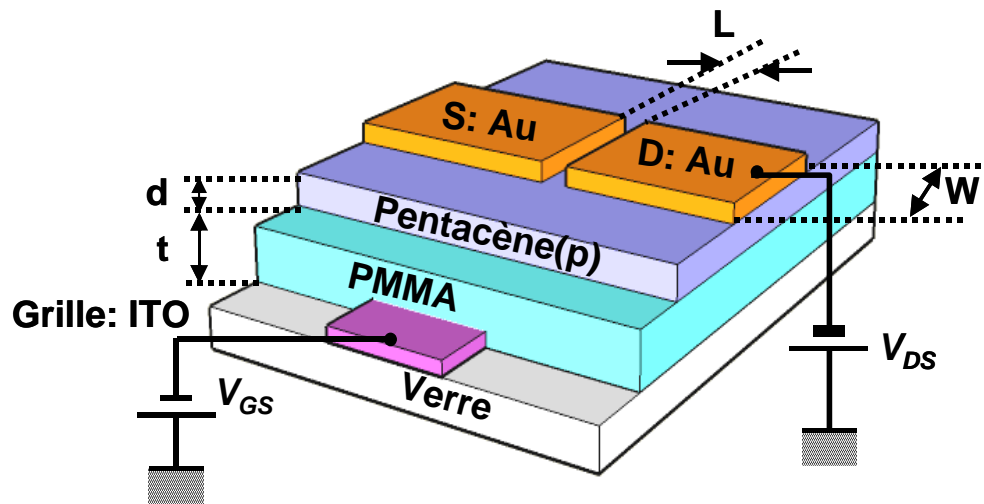
## **I. Introduction :**

Dans cette partie, nous présentons la simulation du fonctionnement d'un transistor OTFT (Organic thin Film Transistor) dont le semi-conducteur organique est le pentacène. Le but est de montrer qu'il est possible de valider par la simulation les résultats compilés sur les propriétés électriques du pentacène et des transistors à base de pentacène. L'étude portera en particulier sur, la mobilité des porteurs, les densités de piège, l'énergie des pièges, la tension seuil. Pour cette étude nous n'avons pas l'ambition de développer un nouveau logiciel de simulation, nous utiliserons principalement le logiciel ATLAS développé par la société Silvaco et dans lequel un module (Organic Display) dédié aux transistors organiques a été implémenté. Nous donnerons pour ce dernier les modèles physiques utilisés pour la simulation. En dernier lieu un logiciel mis en libre service par l'université de Reims (Organic Transistor Model 0.2.9) sera testé avec les paramètres retenus pour nos transistors. Dans cette partie nous allons, dans un premier temps, définir les modèles. On s'intéressera au modèle analytique qui nous a permis de calculer les mobilités en régime de saturation dans les transistors. On précisera ensuite les modèles physiques mis en œuvre dans ATLAS et les particularités liées aux semi-conducteurs organiques. Dans un second temps, à partir des simulations, nous validerons les mesures sur les pièges faites préalablement.

Les paramètres fondamentaux sont la structure de bande, la mobilité, le type de porteurs, la permittivité, la masse effective des trous et des électrons et la densité effective des états dans les bandes de valence et de conduction.

## **II. Etude préliminaire : caractérisation expérimentale de transistors organiques à base de pentacène**

Nous avons opté pour un transistor organique à base de pentacène en géométrie « top contact ». Il est constitué de l'empilement successif d'une couche d'ITO (électrode de grille transparente), recouverte d'une couche de PMMA d'épaisseur  $1\mu\text{m}$  (isolant de grille) puis d'une couche de pentacène suivant la configuration de la figure 1. Le drain et la source ont été obtenus par évaporation thermique sous vide ( $10^{-6}\text{mbar}$ ) de fils d'or ; les films obtenus ont une épaisseur entre 50nm et 100nm. Ces électrodes en or (Au), présentant un travail de sortie élevé (autour de 5eV [1]), permettent une bonne injection des trous vers la bande HOMO du pentacène ; de plus, l'interface Au/pentacène a été réalisée dans la même enceinte sous vide sans remise à l'air.



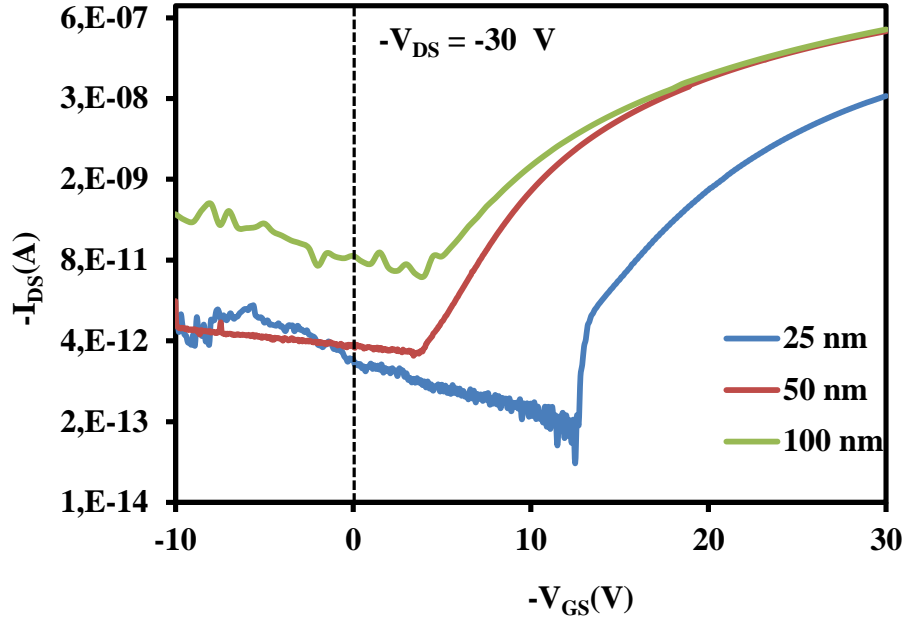
**Figure 1.** Transistor organique en géométrie « top contact » ( L : longueur du canal, W : largeur du canal, d : épaisseur du semiconducteur et t : épaisseur du diélectrique).

Plusieurs paramètres sont importants dans la compréhension du fonctionnement du transistor organique et sur les conséquences du transport dans le canal du transistor. Ici, nous allons nous limiter à l'effet de l'épaisseur de la couche active et de la longueur du canal.

### **II.1. Caractérisations électriques de transistors pour différentes épaisseurs de pentacène:**

Les transistors ont été élaborés suivant l'architecture de la figure 1 ( $L=50\mu\text{m}$  et  $W=4\text{mm}$ ) avec une épaisseur de PMMA de  $1\mu\text{m}$ ; sur la figure 2a, nous avons représenté les caractéristiques de transfert (en échelle logarithmique) des transistors pour différentes épaisseurs de pentacène (25nm, 50nm et 100nm) et pour une tension de drain  $V_{DS}=-30\text{V}$ . On note, d'une

part, que le courant de drain dans le régime d'accumulation est plus élevé à partir d'une épaisseur de 50 nm de pentacène, et d'autre part, que l'inverse des pentes sous le seuil augmente avec l'épaisseur de 1,2V/décade à 3 V/décade. De plus, les gains en courant maximums  $I_{on}/I_{off}$  sont de l'ordre de  $10^3$ ,  $10^5$  et  $2.10^3$  respectivement pour une épaisseur de pentacène de 25nm, 50nm et 100nm.

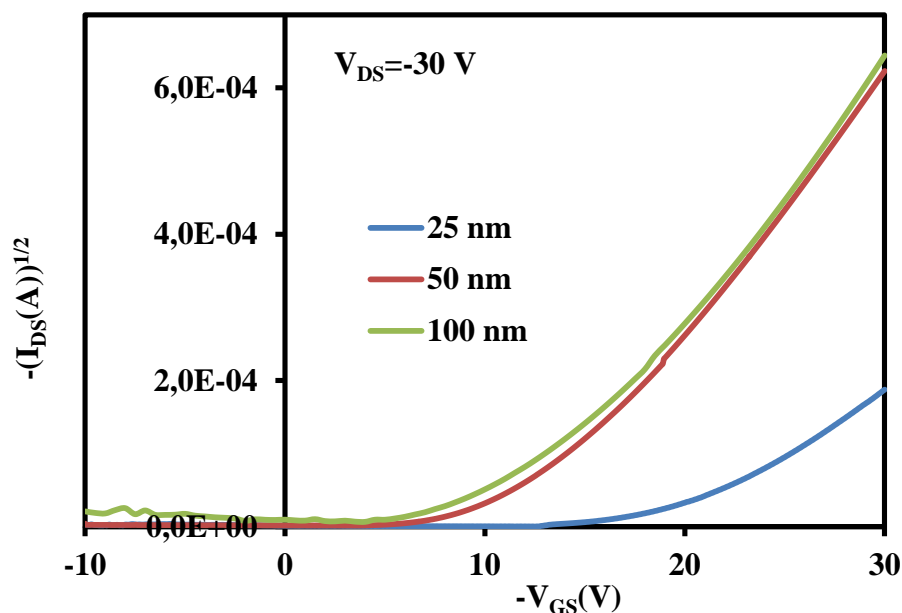


**Figure 2a.** Représentation de  $\log(-I_{ds}) = f(-V_{gs})$  pour trois épaisseurs de film de pentacène (25nm, 50nm et 100nm) à  $V_{ds} = -30V$ .

Sur la figure 2b, nous présentons les caractéristiques qui permettent de déterminer la mobilité dans le régime de saturation  $\mu_{sat}$  et la valeur de la tension de seuil  $V_{Th}$  (

$$\mu_{sat} = \left( \frac{\partial (I_{ds,sat})^{\frac{1}{2}}}{\partial V_{gs}} \right)_{V_{ds}=cte}^2 * \frac{2L}{WC_i} \text{ où } C_i \text{ est la capacité par unité de surface et pour } 1\mu m \text{ de PMMA de}$$

constante diélectrique  $\epsilon = 2,6$  :  $C_i = 2,3 nF/cm^2$ ). A partir de la valeur des pentes à hautes tensions, on obtient des mobilités de  $0,001 cm^2.V^{-1}.s^{-1}$ ,  $0,019 cm^2.V^{-1}.s^{-1}$ ,  $0,02 cm^2.V^{-1}.s^{-1}$  respectivement pour 25nm, 50nm et 100nm de pentacène, les tensions de seuil associées sont de l'ordre de -17V, -14V et -13V. Par conséquent, les propriétés de transport sont améliorées avec la croissance en épaisseur des films de pentacène ; cela est principalement dû à moins de défauts (comme les joints de grains, les dislocations...) et à l'augmentation de la taille des grains, ce qui induit une moindre diffusion de porteurs de charges aux niveaux des joints de grains. En revanche, le courant de fuite ( $I_{off}$  à  $V_{gs} = 0V$ ) est d'autant plus élevé que l'épaisseur du film est importante.



**Figure 2b.** Représentation de  $(-I_{ds})^{1/2} = f(-V_{gs})$  pour trois épaisseurs de films de pentacène (25nm, 50nm et 100nm) à  $V_{ds}=-30V$ .

Les principaux résultats concernant les trois différentes épaisseurs de pentacène sont reportés dans le tableau ci-après :

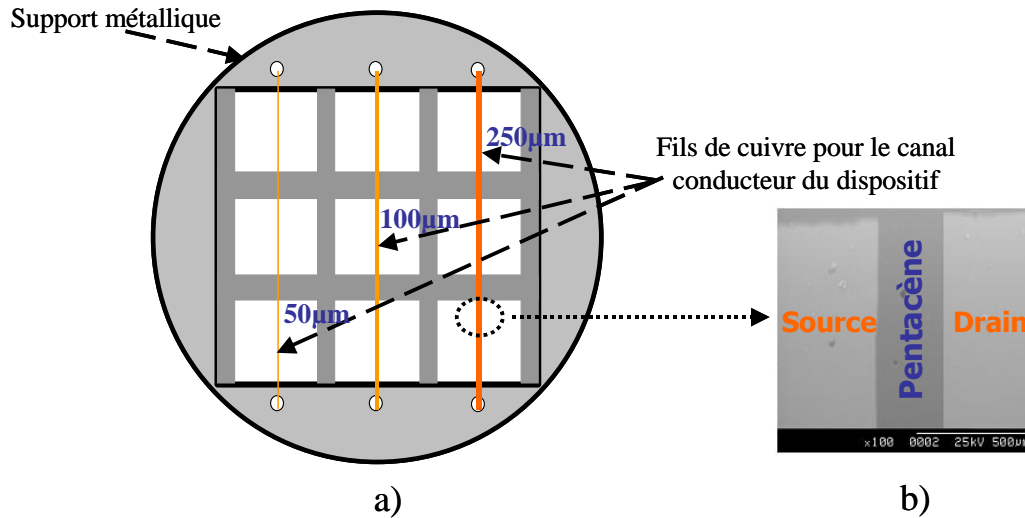
Epaisseur du pentacène (nm)	$I_{on}$ ( $10^{-7}$ A) à $V_{Gs}=-30V$	$I_{off}$ ( $10^{-12}$ A) à $V_{Gs}= 0V$	$I_{on}/I_{off}$	$-V_{th}$ (V)	S(V/décade)	$\mu_{sat}(cm^2.V^{-1}.s^{-1})$
25	0,04	4,5	$10^3$	17	1,2	0,001
50	1,8	2	$10^5$	14	1,6	0,019
100	1,4	93	$2.10^3$	13	3	0,02

**Tableau 1.** Récapitulatif des caractéristiques des OTFT à base de pentacène en fonction de l'épaisseur du pentacène.

L'ensemble de ces résultats montre qu'une épaisseur de pentacène de 50nm semble être un bon compromis pour obtenir des performances optimales. Par conséquent, pour la l'étude en fonction de la longueur du canal, nous utiliserons une épaisseur de pentacène de 50 nm.

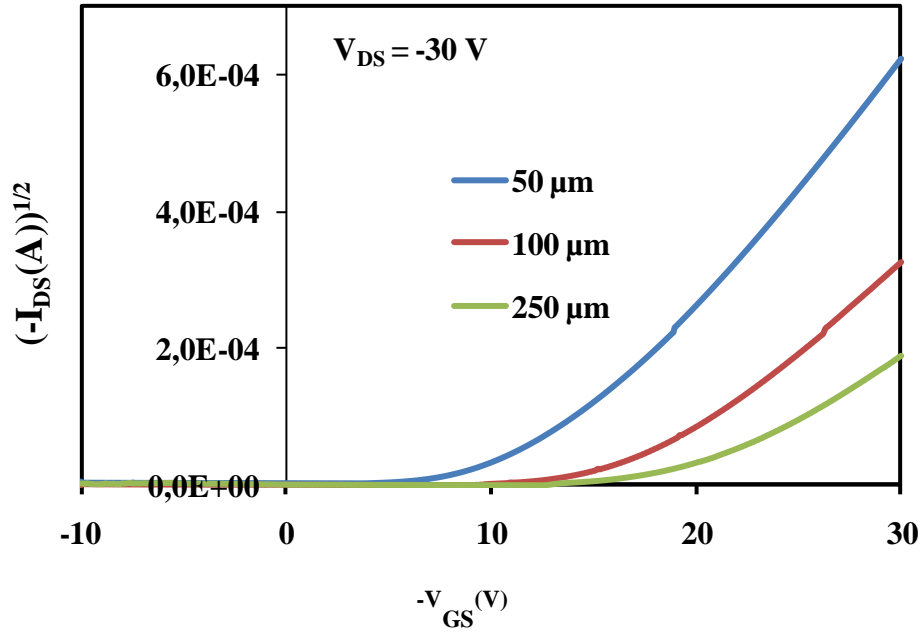
## II.2. Effet de la longueur du canal sur les performances du transistor :

En ce qui concerne les dimensions du canal du pentacène, nous avons utilisé un masque constitué de différentes longueurs de canal ; la longueur est fixée par le diamètre du film de cuivre (figure 3).



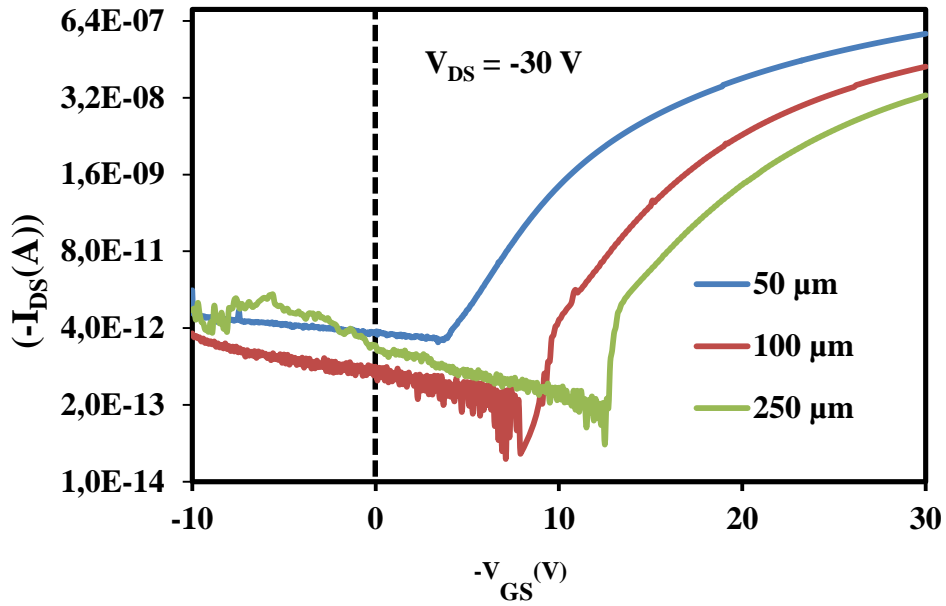
**Figure 3.** a) Masques utilisés pour réaliser le canal du semi-conducteur (50µm, 100µm et 250µm), b) Image au microscope électronique à balayage d'un canal de 250µm.

De façon générale, la diminution de la longueur du canal du transistor entraîne une réduction de la tension de seuil sans modifier la mobilité dans le régime de saturation (figure 4a) : la tension de seuil passe de -18V à -13V lorsque la longueur de canal varie de 250µm à 50µm. Ainsi, du fait que la mobilité n'ait pas été modifiée (de l'ordre de  $0,02\text{cm}^2.\text{V}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ) à cette échelle de longueur du canal, le décalage de la tension de seuil vers les tensions positives est lié à la longueur du canal qui diminue et donc à un nombre de porteurs ayant traversé le semi-conducteur plus important car le temps de transit a diminué ( $t_r \propto L^2$ ) à champ constant. Un tel comportement peut aussi être expliqué par un abaissement de la barrière de potentiel dans le régime de déplétion à l'interface drain/semi-conducteur [2], ce qui favorise l'injection des trous.



**Figure 4a.** Représentation de  $(-I_{ds})^{1/2} = f(-V_{gs})$  pour trois longueurs de canal (250 $\mu m$ , 100 $\mu m$  et 50 $\mu m$ ) à  $V_{ds}=-30V$ .

Les caractéristiques de transfert en échelle log (figure 4b) montrent que les rapports  $I_{on}/I_{off}$  restent largement supérieurs à  $10^4$  et, par conséquent, il n'y a pratiquement pas d'impact sur la longueur du canal.



**Figure 4b.** Représentation de  $\log(-I_{ds})= f(-V_{gs})$  pour trois longueurs de canal (250 $\mu m$ , 100 $\mu m$  et 50 $\mu m$ ) à  $V_{ds}=-30V$ .



Les résultats de cette étude sont récapitulés dans le tableau ci-après :

Longueur du canal ( $\mu\text{m}$ )	$I_{\text{on}}$ ( $10^{-7}$ A) à $V_{\text{Gs}} = -30\text{V}$	$I_{\text{off}}$ ( $10^{-12}$ A) à $V_{\text{Gs}} = 0\text{V}$	$I_{\text{on}}/I_{\text{off}}$	$-V_{\text{th}}$ (V)	$\mu_{\text{sat}}$ ( $\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ )
250	0,7	1,5	$5 \cdot 10^4$	18	0,02
100	1,07	1	$10^5$	14	0,016
50	3,1	3,5	$10^5$	13	0,018

**Tableau 2 :** Récapitulatif des caractéristiques des OTFT à base de pentacène en fonction de la longueur du canal.

### **III. Utilisation de l'outil ATLAS pour la simulation du fonctionnement des transistors organique - Validation des résultats expérimentaux**

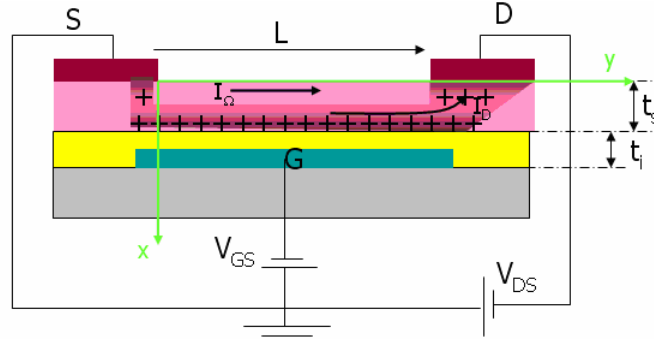
#### **III.1. Modélisation analytique du courant de drain d'un OTFT**

Il faut bien distinguer le transistor monté sur un mono cristal de polymère ou de petites molécules, du transistor fabriqué sur une couche polymère ou de petites molécules. Le premier s'apparente à un transistor sur monocristal, alors que le second est plus proche du transistor sur silicium amorphe.

Le cas qui nous intéresse dans notre travail est le second pour de multiples raisons, la principale étant qu'on ne sait pas obtenir des monocristaux de pentacène de grande taille.

Dans le cadre du transistor à semi conducteur amorphe, et polymère plus particulièrement, nous avons le modèle traditionnel, il est issu des modélisations du transistor MOS auxquelles sont greffées des adaptations.

La figure 5 donne une image du principe de fonctionnement d'un OTFT en configuration top contact, avec ses conditions de polarisation, compte tenu de fait que le transistor travaille en régime d'accumulation.



**Figure 5.** Conditions de polarisation, conventions d'écriture, et principe de fonctionnement d'un OTFT, ici en configuration top contact.

En régime d'accumulation, de trous pour ce qui nous concerne et de ce que l'on en sait, il n'existe pas de zone de déplétion qui isole le canal du reste du substrat du semi conducteur. Ainsi, au courant de drain  $I_{DS}$  résultant des porteurs accumulés par effet de champ de la tension  $V_{GS}$  négative, se superpose un courant ohmique de trous majoritaires  $I_{\Omega}$  dans le semi conducteur organique. Le courant total est par conséquent de la forme :

$$I_T = I_{DS} + I_{\Omega}$$

$$I_{\Omega} = j_{\Omega} S \text{ où on écrira : } j_{\Omega} = \sigma_{\Omega} \mathcal{E} \quad \text{avec : } \mathcal{E} = \frac{|V_{DS}|}{L}$$

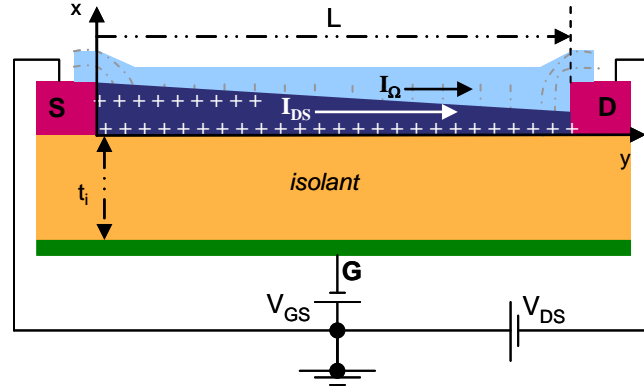
et  $S = wt_s$ ,  $t_s$  représentant l'épaisseur du semi conducteur. Il en résulte que :

$$I_{\Omega} = \sigma_{\Omega} wt_s \frac{|V_{DS}|}{L}$$

## **III.2. Equation différentielle du courant de drain $I_{DS}$ .**

### **III.2.1. La charge par accumulation.**

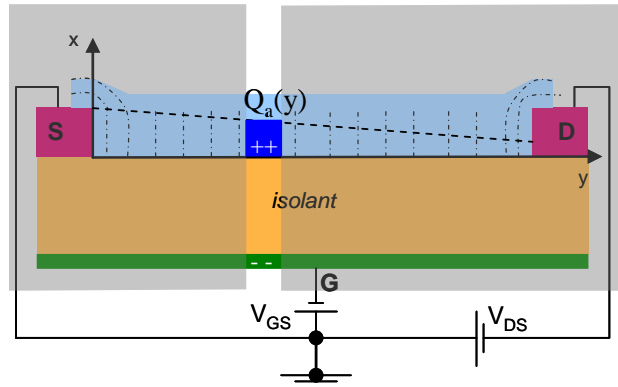
Il s'agit ici d'exprimer la charge par accumulation  $Q_a$  en fonction de la géométrie de la structure (figure 6).



**Figure 6 a.** vue en coupe de la géométrie du MIS FET organique en couches minces dans la structure bottom

contact. Rappelons les définitions des paramètres essentiels :  $C_i = \frac{\epsilon_i}{t_i}$   $2K = \mu_p C_i$  où  $K$  est appelé paramètre de

technologie  $\gamma = \frac{W}{L}$  est le paramètre de dessin,  $W$  étant la dimension de la structure selon  $z$ . Les lignes en tirets représentent la vue en coupe des surfaces équipotentielle dans le semi conducteur.



**Figure 6b.** La charge par accumulation et par unité de surface  $Q_a(y)$  constituant le canal par accumulation a été isolée de la structure pour montrer qu'elle est une fonction linéaire de  $y$ .

Le fonctionnement en régime d'accumulation prend naissance dans une structure idéale dès que les trous apparaissent en surface pour créer une courbure de bandes  $\phi_s$  négative, donc dès que  $V_{GS}$  est négative. La charge par unité de surface  $Q_a(y)$  vaut donc :

$$Q_a(y) = C_i [V(y) - V_{GS}]$$

Puisque la charge d'accumulation est induite à travers la capacité par une charge égale en valeur absolue, mais de signe opposé formée par  $V_{GS}$  sur la grille. Il est important de noter pour la suite que  $V(y)$ , la tension locale dans le canal, doit être mesurée par rapport à la source puisque

la tension de grille est mesurée par rapport à la source.  $V(y)$  et  $V_{GS}$  doivent en effet avoir même référence de potentiel.

Dans une structure réelle, caractérisée par la tension de seuil  $V_T$ , il n'y a que la part de  $V_{GS}$  au-delà de  $V_{FBp}$  qui contribue réellement à créer la charge  $Q_a(y)$ . En conséquence :

$$Q_a(y) = C_i [V(y) - (V_{GS} - V_T)]$$

Cette équation montre que  $Q_a(y)$  varie linéairement avec  $V(y)$ . Comme le champ électrique  $E(y)$  est supposé constant approximation du canal long :

$$E(y) = -\frac{V_{DS}}{L} \quad V_{DS} \text{ varie linéairement avec } y ; \text{ il en résulte que } Q_a(y) \text{ en fait de même.}$$

### III.2.2. Equation différentielle du courant.

L'équation du courant s'établit à partir de l'expression de la densité de courant. Soit  $\vec{j}(x, y)$  la densité locale de courant à travers la section  $d\vec{S} = w \cdot dx \cdot \vec{e}_y$  dans le plan de section de cote  $y$ , l'élément différentiel (figure 7) de courant contribuant au courant de drain  $I_{DS}$  est :

$$dI_{DS}(y) = \vec{j}(x, y) \cdot d\vec{S}$$

$$\text{Or : } \vec{j}(x, y) = \sigma(x, y) \vec{E}(x, y) \quad \text{avec : } \sigma(x, y) = qp(x, y) \mu_p(x, y)$$

où  $p$  représente la concentration en trous formés par accumulation au moyen de  $V_{GS}$ .

Or il existe suivant la valeur de  $V_{GS}$  deux types de porteur  $p$ . Examinons plus en détail la situation.

Pour  $V_{GS}$  petit : les états de pièges accepteurs de trous à partir de la BV ne sont pas thermalisés. Ces trous sont dans des états localisés.

$$p_{ind}(x, y) \mu_p(x, y) = p_{indh}(x, y) \mu_{ph}(x, y)$$

où  $p_{indh}$  est la concentration en trous induits par  $V_{GS}$  et effectuant un transport par saut, et  $\mu_{ph}$  la mobilité associée à ce mode de déplacement des trous.

Pour  $V_{GS}$  grand : le pseudo niveau de Fermi  $E_{FP}$  est entré dans la bande HOMO. Deux types de déplacement sont alors possibles :

- Le même que précédemment pour les trous dont les niveaux d'énergie sont au dessous de  $E_{FP}$ , et le mode par effet d'entraînement (ou de dérive, "effet drift") pour les trous placés dans les états délocalisés sous le pseudo niveau de Fermi  $E_{FP}$  ; leur concentration est  $p_{indd}$  et la mobilité associée  $\mu_{pd}$ .

Si bien que, théoriquement, la conductivité est la superposition de deux termes :

$$\sigma(x, y) = q[p_{indh}(x, y)\mu_{ph}(x, y) + p_{indd}(x, y)\mu_{pd}(x, y)]$$

Chacun étant attaché aux deux phénomènes précédemment décrits. Cette écriture pose des difficultés pour l'intégration analytique du courant de drain ultérieurement. Ainsi se satisfera-t-on de la forme d'écriture :

$$\mu_p(y) \int_0^{x_a(y)} p(x, y) dx = \int_0^{x_a(y)} [\mu_{ph}(x, y)p_{indh}(x, y) + \mu_{pd}(x, y)p_{indd}(x, y)] dx$$

Et en effectuant l'approximation du canal long :

$$\sigma(x, y) = q\mu_p(y)p(y) \quad \text{avec} \quad p(y) = \int_0^{x_a(y)} p(x, y) dx$$

Il vient ainsi :

$$dI_{DS} = \mu_p w E(y) q p(y) dx$$

Soit :

$$I_{DS} = \mu_p w E(y) \int_0^{x_a(y)} q p(y) dx$$

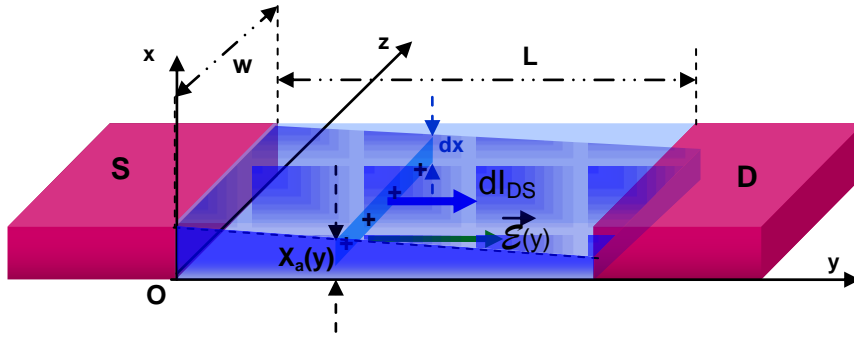


Figure 7. \_ Éléments différentiels permettant de calculer le courant de drain  $I_{DS}$ . L'élément différentiel d'épaisseur  $dx$  est découpé dans la tranche située en  $y$  du canal d'accumulation d'épaisseur  $x_a(y)$ . Il donne naissance à l'élément de courant source – drain  $dI_{DS}$ .

La quantité sous le signe somme  $\int_0^{x_a(y)} qn(y)dx = Q_a(y)$

qui vaut  $Q_a(y) = C_i [V(y) - (V_{GS} - V_T)]$

Si bien qu'au total, en écrivant que :  $\mathcal{E}(y) = -\frac{dV}{dy}(y)$ , il vient :

$$I_{DS} = \mu_p w C_i [V_{GS} - V_T - V(y)] \frac{dV}{dy}(y)$$

Soit en séparant les variables :

$$[V_{GS} - V_T - V(y)] dV(y) = \frac{I_{DS}}{\mu_p C_i w} dy$$

Cette dernière équation constitue "l'équation différentielle du courant de drain".

### III.2.3. Le courant de drain $I_{DS}$ en régime linéaire

Compte tenu de la géométrie de la figure 7 le long du canal, la tension  $V(y)$  varie de  $V(y=0)=0$  (puisque  $V(y)$  est mesurée par rapport à la source) à  $V(y=L)=V_{DS}$ , pendant que  $y$  varie de 0 à  $L$ .

Dans ces conditions, l'intégration de l'équation différentielle précédente conduit à :

$$(V_{GS} - V_T) \int_0^{V_{DS}} dV(y) - \int_0^{V_{DS}} V(y) dV(y) = \frac{I_{DS}}{\mu_p C_i w} \int_0^L dy$$

Qui devient, en posant  $\gamma = \frac{w}{L}$ , appelé paramètre de dessin, et :  $K = \frac{\mu_p C_i}{2}$ , désigné

comme le paramètre de technologie :

$$(V_{GS} - V_T) V_{DS} - \frac{V_{DS}^2}{2} = \frac{I_{DS}}{2K\gamma}$$

Soit encore pour le courant de drain :  $I_{DS} = 2K\gamma \left[ (V_{GS} - V_T) V_{DS} - \frac{V_{DS}^2}{2} \right]$

Cette équation décrit le courant de drain en régime dit " linéaire " et dans la zone de distorsion avant d'entrer en régime de saturation.

#### **III.2.4. Le courant de drain en régime de saturation**

Lorsque  $|V_{DS}|$  augmente, l'expression de la charge par accumulation :

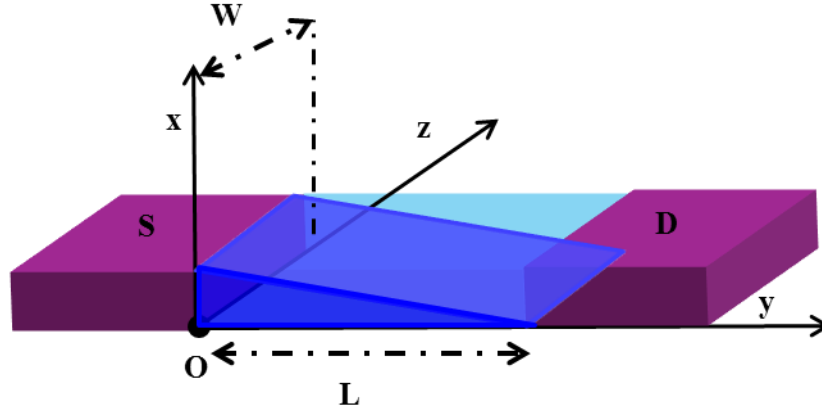
$$Q_a(y) = C_i [V(y) - (V_{GS} - V_T)]$$

va s'annuler lorsque  $V(y)$  compensera exactement le terme  $(V_{GS} - V_T)$ . La valeur de  $y$  pour laquelle cette compensation se fera en premier là où  $|V(y)|$  est le plus grand dans le canal, c'est-à-dire pour  $y=L$ . L'annulation de  $Q_a(y)$  se fera donc pour :

$$V_{DS} - (V_{GS} - V_T) = 0$$

$$\text{Soit pour : } V_{DS} = V_{DS|_{sat}} = V_{GS} - V_T$$

Où  $V_{DS|_{sat}}$  est appelée la tension drain – source à la saturation. Quand  $|V_{DS}|$  continuera à croître au delà de cette valeur, la nullité de  $Q_a(y)$  se produira pour  $y=L$  (figure 8).



**Figure 8.** Forme du canal en régime de saturation.

La tension en  $y=L$ , extrémité du canal à saturation, vaut toujours  $V(L)=V_{DS}]_{sat}$ , quelle que soit  $L'$ . Les porteurs arrivent en  $L'$  avec leur énergie maximale :  $E_{max}=-qV_{DS}]_{sat}=\frac{1}{2}m_p v_{max}^2$ , si  $v_{max}$  est leur vitesse maximale. Cette vitesse devra leur permettre de franchir l'espace compris entre  $O$  et  $L$ . Il se peut qu'il y ait des recombinaisons avec des électrons minoritaires; ce phénomène reste peu probable dans la mesure où cette zone est constituée par du semi conducteur p. La différence par rapport à un semi conducteur classique inorganique, travaillant en inversion, est que cette partie de l'espace est alors constituée de la zone de déplétion, donc pauvre en porteurs. L'encombrement en porteurs produit dans cette région, pour un organique, est à l'origine d'un échauffement par effet Joule, qui peut être à l'origine de la destruction du composant.

L'expression du courant de drain dans ce régime de saturation s'obtient en remplaçant  $V_{DS}$  par son expression  $V_{DS}]_{sat}$  soit :

$$I_{DS} = I_{DSS} = 2K\gamma \left[ (V_{GS} - V_T)(V_{GS} - V_T) - \frac{(V_{GS} - V_T)^2}{2} \right]$$

Et finalement, le courant de drain à saturation vaut :

$$I_{DSS} = K\gamma (V_{GS} - V_T)^2$$

On remarque que le courant de drain ne dépend plus de la tension de drain  $V_{DS}$ .



### **III.2.5. Le courant total**

#### **III.2.5.a. En régime linéaire.**

Au courant de drain,

$$I_{DS} = 2k\gamma[(V_{GS} - V_T)V_{DS} - \frac{V_{DS}^2}{2}]$$

S'ajoute le courant ohmique :

$$I_{\Omega} = \sigma_{\Omega} w t_s \frac{|V_{DS}|}{L}$$

Soit, en tenant compte du signe négatif de  $V_{DS}$  :

$$I_T = 2k\gamma[(V_{GS} - V_T)V_{DS} - \frac{V_{DS}^2}{2}] - \sigma_{\Omega} w t_s \frac{V_{DS}}{L}$$

#### **III.2.5.b. En régime de saturation.**

A la valeur donnée par l'équation précédente s'ajoute le terme  $I_{\Omega}$  :

$$I_T = K\gamma[V_{GS} - V_T]^2 - \sigma_{\Omega} w t_s \frac{V_{DS}}{L}$$

Si on néglige le courant, c'est à dire si on se place à des valeurs de  $V_{GS}$  pour lesquelles le courant de drain varie avec le carré de la tension de grille on peut déterminer la mobilité en régime de saturation.

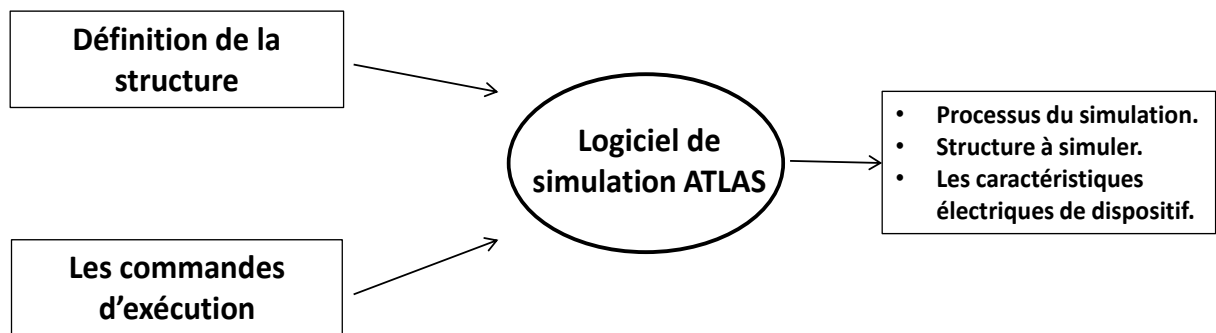
### **III.3. La simulation à partir du logiciel ATLAS**

Le logiciel de simulation ATLAS (de la société SILVACO) permet la modélisation 2D et 3D des composants. Il est capable de prédire les caractéristiques électriques de la plupart des composants à semi-conducteurs en régime continu, transitoire ou fréquentiel.

En plus du comportement électrique "externe", il fournit des informations sur la distribution interne de variables telles que les concentrations des porteurs, les lignes de courant, la répartition du champ électrique ou le potentiel. Ces données sont importantes pour la conception et

l'optimisation des procédés technologiques, elles sont obtenues en résolvant numériquement l'équation de Poisson et les équations de continuité des champs et des potentiels en deux dimensions en un nombre fini de points formant le maillage de la structure, défini par l'utilisateur ou par le programme. Il est composé de deux parties, une pour le traitement numérique (méthode d'intégration, de discrétisation) et une autre formée des modèles physiques des composants semi-conducteurs qui sont mis à jour de façon continue.

Dans la figure 9, nous présentons les informations d'entrée et de sortie pour ATLAS, en entrée on donne la description de la structure à simuler et les commandes des exécutions sous forme texte. Les informations en sortie sont données sous trois formes, la première sous formes texte qui donne toutes les étapes des calculs, la deuxième et la troisième sont données par le sous programme Tonyplot qui permet de visualiser la structure en 2D ou 3D et les caractéristiques électriques demandées.



**Figure 9.** Entrée et sortie du logiciel de simulation.

### **III.3.1. Les paramètres pour la simulation**

Avant de présenter de façon détaillée le logiciel une étude bibliographique a été faite pour collecter les valeurs numériques des paramètres à rentrer dans le logiciel. Bien évidemment les valeurs expérimentales déterminées dans la première partie de ce travail seront utilisées dans la simulation. Elles permettront aussi de discuter des modèles mis en œuvre. Le semi-conducteur qui a été retenu pour la simulation est donc le pentacène pour ses performances et eu en égard à son utilisation au laboratoire depuis plusieurs années. Les paramètres sur lesquels la communauté scientifique est d'accord sont : le gap, la permittivité, l'affinité électronique. Pour les densités des états dans la bande de valence et la bande de conduction et les densités de pièges et

les densités de porteurs de charges des précisions restent à apporter car les valeurs sont assez différentes suivant les méthodes de mesures et les précisions qui en découlent.

### **III.3.1.a. Propriétés physiques et électroniques du pentacène**

Le pentacène est donc l'un des matériaux semi-conducteurs organiques à molécule courte qui a suscité le plus d'intérêt en raison de sa mobilité sous effet de champ et de sa bonne stabilité [3]. Dès le début des années 80, les études menées, ont rapporté des mobilités proches de celle du silicium amorphe hydrogéné. Ces propriétés sont liées entre autre à la morphologie des couches de pentacène qui présentent des zones cristallines de taille importante. En effet, Les paramètres cristallographiques d'un cristal semi-conducteur sont une propriété très importante. La molécule de pentacène est longue et étroite, elle cristallise dans la structure triclinique. Sa maille est décrite par les paramètres de maille ( $a=7,6 \text{ \AA}$  ;  $b=5,9 \text{ \AA}$  ;  $c=15,43 \text{ \AA}$ ) et trois angles ( $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$ ).

Les liaisons inter moléculaires du pentacène sont dues aux forces de van der Waal. On pense que les forces de Van der Waal sont provoquées par des moments dipolaires induits entre les molécules adjacentes donc ce sont des forces de Keesom. Ces forces sont beaucoup plus faibles que les liaisons covalentes présentent dans un semi-conducteur inorganique traditionnel. L'énergie des liaisons de type van der Waal est approximativement de  $10^{-2} \text{ eV}$  [4], alors que l'énergie des liaisons covalentes sont dans la gamme de  $2-4 \text{ eV}$  [5]. La liaison de Van der Waal crée un matériel plus faible et moins rigide qu'avec des liaisons covalentes. Ces faibles forces faibles sont les causes dominantes de la basse mobilité et d'autres caractéristiques, qui font des transistors basés sur les matériaux organiques des transistors lents et difficiles à modéliser.

### **III.3.1.b. Structure de bande**

La structure de bande des semi-conducteurs organiques est différente de celle des semi-conducteurs inorganiques. Comme nous le préciserons par la suite, les bandes de transport dans les organiques sont plus étroites que celles des inorganiques et la structure de bande est facilement perturbée par le désordre dans ces matériaux. Le faible couplage entre les molécules entraîne une localisation importante des porteurs de charge. En effet, le transport est assuré par une séquence d'étapes de transfert de charge entre les molécules, ce qui est similaire au transport

par saut (hopping) entre états localisés dans les semi-conducteurs inorganiques. La bande interdite des matériaux organiques est relativement large (1,7 à 2,8 eV). Dans le tableau 3 nous présentons l'énergie de gap rapportée dans la littérature comprenant à la fois des valeurs théoriquement calculées et des valeurs expérimentalement mesurées.

Valeur (e.V)	2,27	2,47	2,46	2,83	1,85
Type	adiabatique	adiabatique	adiabatique	Optique	-
Méthode	Mesure	Mesure	Calcul	Mesure	Mesure

**Tableau 3.** Différentes valeurs de gap trouvées dans littérature [6,7]

On rappelle que la valeur que nous avons déterminée expérimentalement est de 1,8eV et que c'est celle que nous rentrerons à priori dans la simulation.

### **III.3.1.c. Affinité électronique**

Cette valeur tient son importance du fait de l'alignement des niveaux de Fermi à l'équilibre thermodynamique. Des études antérieures ont montré que lorsqu'un métal est déposé au-dessus du semi-conducteur organique, une barrière d'énergie est formée à l'interface. Pour modéliser les contacts des transistors, il est nécessaire de connaître la barrière de potentiel qui apparaît lors du dépôt d'un métal. Selon l'étude faite sur le pentacène par Silinish et al. [5] la valeur de l'affinité électronique est égale à 2,49 e.V.

### **III.3.1.d. Mobilité des trous**

La mobilité électrique détermine la capacité d'un porteur de charge à se déplacer à l'intérieur d'un matériau semi-conducteur en réponse à un champ électrique. La mobilité dans les matériaux organiques reste faible. Il y a beaucoup de raisons pour cette petite mobilité, mais la nature amorphe du matériau organique et la nature faible des forces de Van Der Waal sont les raisons fondamentales.

Puisque les matériaux organiques sont principalement de type p, la mobilité des trous est un paramètre très important à incorporer à tout programme de modélisation. Il est tout à fait difficile de prévoir cette mobilité avec les semi-conducteurs organiques parce que c'est une fonction forte de l'histoire de la fabrication de l'échantillon. Ceci peut être dû en partie à la nature irrégulière de

la structure du matériau. Par exemple, la taille de grain en couches minces poly-cristallines dépendra fortement des conditions de dépôt.

Par exemple le pentacène thermiquement déposé crée des cristaux fortement structurés et simples, il a donc une mobilité de trou sous l'effet d'un champ électrique élevée [8] de l'ordre de  $10^{-2} \text{ cm}^2.\text{V}^{-1}.\text{s}^{-1}$  quand les paramètres de dépôts sont optimisés. Pour la mobilité sans champ nous considérerons la valeur déterminée expérimentalement précédemment de  $4.10^{-5} \text{ cm}^2.\text{V}^{-1}.\text{s}^{-1}$ .

### **III.3.1.e. Dopage**

Le pentacène et beaucoup d'autres matériaux organiques sont intrinsèquement dopés. La mesure du nombre d'accepteurs doit être faite par l'analyse des dispositifs fabriqués. Yang et al. [9] ont déterminé la valeur du nombre d'accepteurs par réalisation d'une capacité avec 400 nm de pentacène à l'aide d'une mesure C-V. Un ajustement des données a été réalisé en conjonction avec un modèle de circuit équivalent et les autres données pour calculer une densité d'accepteur égale à  $1,7*10^{16} \text{ cm}^{-3}$ .

Brown et ses collaborateurs [10], ont déduit la densité en accepteurs, de la tension de pincement de grille observée à partir de la variation du courant dans un dispositif MOS, à partir de l'équation suivante :

$$W = \frac{\epsilon_s}{\epsilon_i} \left( \left( 1 + \frac{2C_i V_g}{qN_a \epsilon_s} \right)^{\frac{1}{2}} - 1 \right)$$

La densité en accepteur trouvée est égale à  $N_1 = 2.10^{17} \text{ cm}^{-3}$ .

Enfin je rappelle que le nombre la densité de pièges déterminée expérimentalement à partir des courbes I(V) dans la première partie de ce travail est de  $3.10^{17} \text{ cm}^{-3}$  avec une profondeur moyenne de 0,19eV. Tous ces résultats précisent la gamme sur laquelle on doit faire varier la densité des états accessibles par saut dans la bande de valence du pentacène.

### **III.3.1.f. Densité effective des états pour les bandes de valence et de conduction:**

Les densités effectives des états pour les bandes de valence et de conduction sont données par les formules qui suivent:

$$N_v = 2 \left( \frac{2\pi m_{dh} kT}{h^2} \right)^{3/2}$$

$$N_c = 2 \left( \frac{2\pi m_{de} kT}{h^2} \right)^{3/2}$$

Où le  $m_{dh}$  est la masse effective des trous,  $m_{de}$  est celle des électrons,  $k$  est la constante de Boltzmann,  $h$  est le constant de Planck,  $T$  est la température.

La densité effective des états pour la bande de valence a été mesurée [11], nous retiendrons ici une valeur de l'ordre de  $N_v = 3.10^{19} \text{ cm}^{-3}$ . Cette valeur dépend de l'isolant de grille, de la méthode de dépôt du pentacène, d'un éventuel recuit et sera donc précisée suite aux simulations. La valeur de  $N_c$  est sans importance pour le pentacène qui est considéré dans nos simulations comme un semi conducteur de type p, par défaut ATLAS prend la même valeur que celle entrée pour  $N_v$ .

### **III.3.1.g. Permittivité diélectrique**

La permittivité diélectrique est une propriété physique qui décrit la réponse d'un milieu au champ électrique appliqué, la relation qui relie le champ électrique et la permittivité diélectrique est la suivante :

$$\vec{D} = \epsilon \vec{E}$$

Où  $\vec{D}$  est le vecteur de déplacement,  $\epsilon$  est la permittivité scalaire,  $\vec{E}$  est le vecteur champ électrique.

Les isolants ont tendance à avoir des faibles permittivités, tandis que les conducteurs ont des valeurs plus élevées. Les semi-conducteurs tombent entre les deux extrêmes. Fréquemment, la permittivité d'un matériau est donnée en comparaison à celle de la constante diélectrique de l'air ( $8,85 \cdot 10^{-14} \text{ F/cm}$ ), soit comme une permittivité relative. Par conséquent, le dioxyde silicium, qui est de type isolant, a une permittivité de 3,8 tandis que celle de silicium est de 11,8. En ce qui concerne le pentacène, lui a une permittivité de 4.

### **III.4. Modèles physique utilisé dans ATLAS:**

ATLAS utilise pour la simulation des modèles mathématiques qui peuvent être appliqué à tous les semi-conducteurs. Ces modèles empruntés à la théorie du silicium que l'on peut retrouver dans les ouvrages de S. Sze [12] ou de H. Mathieu [13] s'appuient sur des équations et des lois fondamentales que nous allons rappeler dans cette partie. Nous présentons par la suite l'équation de Poisson, les équations de continuité et de transport de charge.

#### **III.4.1. Équation de Poisson**

L'équation de Poisson relie le potentiel électrostatique à la densité de charge, elle dérive de la forme local du théorème de Gauss c'est à dire de l'équation dite de Maxwell-Gauss

$$\text{div} \vec{E} = \frac{\rho(x, y, z)}{\epsilon}$$

Où  $\epsilon$  est la constante diélectrique du semi-conducteur,  $\vec{E}$  le champ électrique.

Comme le champ électrique est relié au potentiel par la relation suivante :

$$\vec{E} = -\overrightarrow{\text{grad}} V.$$

L'équation de Poisson s'écrit s'écrit sous la forme :

$$\Delta V = -\frac{\rho(x, y, z)}{\epsilon}$$

L'intégration de cette équation permet de calculer la variation du potentiel dans un semi-conducteur à partir de la charge d'espace.

La densité de charge est calculée en tout point d'un semi-conducteur en tenant compte des charges qui existent en ce point (les charges mobiles et les charges fixes). En l'absence de centres profonds ionisés cette charge d'espace est donnée par :

$$\rho = q(N_a^+ - N_a^- + p - n)$$

Où  $N_a^+$  et  $N_a^-$  représentent les densités d'accepteurs et de donneurs ionisés,  $n$  et  $p$  représentent les densités de porteurs libres.

### III.4.2. Les équations de continuité

Les équations de continuité sont appliquées à la condition d'équilibre dynamique des porteurs dans le semi-conducteur. Elles décrivent l'évolution du nombre de porteurs au cours du temps. Elles donnent la relation entre les courants, les mécanismes de génération et de recombinaison et la distribution spatiale et temporelle des porteurs de charges libres :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{1}{q} \text{div} J_n + G_n - R_n$$

$$\frac{\partial p}{\partial t} = -\frac{1}{q} \text{div} J_p + G_p - R_p$$

Où  $n$  est la densité des électrons et  $p$  la densité des trous,  $J_n$  et  $J_p$  sont les densités de courant des électrons et des trous respectivement,  $G_n$  et  $G_p$  sont les taux de génération des électrons et des trous,  $R_n$  et  $R_p$  sont les taux de recombinaison des électrons et des trous et  $q$  est la charge élémentaire de l'électron.

Pour les simulations de transistors organiques, aucune absorption optique n'est considérée.

### III.4.3. Les équations de transport des porteurs de charge

L'équation de Poisson et les équations de continuité fournissent les bases nécessaires à la simulation de tous les composants. Des équations complémentaires sont cependant nécessaires pour définir les densités de courant, les taux de génération de porteurs ainsi que les taux de recombinaison. Un certain nombre d'approximations simplificatrices sont possibles pour modéliser le transport de charge et obtenir les équations de la densité de courant. Le modèle le plus simple est emprunté aux travaux de Selberherr [14] et a été mis en œuvre dans Atlas. Dans ce cas la densité de courant est, pour chacun des porteurs, liée à un courant de diffusion et à un courant de conduction. La densité de courant relatif à ce dernier est exprimé en fonction des potentiels des quasi niveau de Fermi  $\Phi_n$  et  $\Phi_p$ :

$$\vec{J}_n = -q\mu_n n \nabla \Phi_n$$

$$\vec{J}_p = q\mu_p p \nabla \Phi_p$$



Où  $\mu_n$  et  $\mu_p$  sont les mobilités des électrons et des trous. Les quasis niveau de Fermi sont reliés à la densité de charge libre à partir de l'approximation de Boltzmann de la loi de répartition de Fermi-Dirac:

$$n = n_{ie} \exp \frac{q(V - \phi_n)}{kT}$$

$$p = n_{ie} \exp \frac{q(\phi_p - V)}{kT}$$

Où  $n_{ie}$  est la concentration en porteurs intrinsèques,  $T$  la température,  $k$  la constante de Boltzmann et  $V$  la tension de polarisation. Le potentiel des quasi niveau de Fermi est donc donné par :

$$\phi_n = V - \frac{kT}{q} \ln \frac{n}{n_{ie}}$$

$$\phi_p = V + \frac{kT}{q} \ln \frac{p}{n_{ie}}$$

En remplaçant  $\Phi_n$  et  $\Phi_p$  par leur expression dans les équations de densités de courant on obtient :

$$\vec{J}_n = qD_n \nabla n - qn\mu_n \nabla V - \mu_n n (kT \nabla (\ln n_{ie}))$$

$$\vec{J}_p = -qD_p \nabla p - qp\mu_p \nabla V + \mu_p p (kT \nabla (\ln n_{ie}))$$

Plus conventionnellement les courants des électrons et des trous sont décrits comme étant la somme de deux contributions, à savoir une composante proportionnelle au champ électrostatique  $\vec{E} = -\nabla V$ , et une composante de diffusion proportionnelle au gradient de la densité de porteurs :

$$\vec{J}_n = qn\mu_n \vec{E}_n + qD_n \overrightarrow{\text{grad}n}$$

$$\vec{J}_p = qp\mu_p \vec{E}_p - qD_p \overrightarrow{\text{grad}p}$$

Où  $D_n$  et  $D_p$  sont les coefficients de diffusion d'Einstein des porteurs, ils sont reliés à la température et à la mobilité par les lois bien connues:

$$D_n = \frac{kT}{q} \mu_n \quad \text{et} \quad D_p = \frac{kT}{q} \mu_p$$

Et les champs électriques sont normalement définis par :

$$\vec{E}_n = -\nabla(V + \frac{kT}{q} \ln n_{ie}) \text{ et } \vec{E}_p = -\nabla(V - \frac{kT}{q} \ln n_{ie})$$

Le calcul de la densité de courant en tout point d'une section du semi-conducteur organique en fonction des tensions appliquées sur les électrodes permettra de calculer les caractéristiques de sortie et de transfert, pour cela il faut encore être capable de déterminer le nombre de porteurs et la mobilité en fonction des champs appliqués.

#### **III.4.4. Les contacts implémentés**

Toute structure semi-conductrice est inévitablement reliée à des lignes métalliques de transport du courant. Il est indispensable que les contacts entre les lignes de transport et le semi-conducteur laissent passer le courant dans les deux sens et présentent des résistances les plus faibles possible. Suivant la position des niveaux de Fermi dans le semi-conducteur et dans le métal le contact implémenté sera soit ohmique soit redresseur. Pour un semi conducteur de type p le contact sera ohmique si le travail de sortie du métal est plus grand que celui du semi-conducteur. On notera ici qu'il n'est pas tenu compte des propriétés particulières des semi-conducteurs organiques.

##### **III.4.4.a. Contact ohmique**

Dans Atlas le contact est supposé ohmique dès qu'il n'est pas spécifié de travaux de sortie. Dans ce cas les concentrations en porteurs à la surface du semi-conducteur  $n_s$  et  $p_s$  sont fixés en fonction des caractéristiques du semi-conducteur. La valeur des quasi-niveaux de Fermi est celle du potentiel appliqué  $\phi_n = \phi_p = V$ . Le potentiel de surface  $\Phi_s$  est déterminé en tenant compte de la neutralité de la charge d'espace:

$$n_s - p_s = N_D - N_A$$

$$n_s p_s = n_{ei}^2$$

Avec l'application de la statistique de Boltzmann

$$\Phi_s = V + \frac{kT}{q} \ln \frac{n_s}{n_{ie}} = V + \frac{kT}{q} \ln \frac{p_s}{n_{ie}}$$

$$n_s = \sqrt{\frac{(N_D - N_A)^2}{4} + n_{ie}^2} + \frac{(N_D - N_A)}{2}$$

$$p_s = \sqrt{\frac{(N_D - N_A)^2}{4} + n_{ie}^2} - \frac{(N_D - N_A)}{2}$$

#### III.4.4.b. Contact Schottky

Dans notre cas où nous allons injecter des charges dans le pentacène, ce contact correspond au fait que lorsque le niveau de Fermi du métal est plus haut que le niveau de Fermi du semi-conducteur des électrons vont se déverser dans le semi-conducteur et créé une zone de charge d'espace relativement profonde du fait que le nombre de trous par unité de volume est faible dans le semi-conducteur. Le contact est alors bloquant on aura alors une émission de type thermoélectronique. Suivant les paramètres spécifiés, ATLAS mettra en œuvre des modèles plus ou moins sophistiqués pour calculer la densité de courant à l'interface métal semi-conducteur. Dans le cas d'une jonction métal semi-conducteur organique il faudra toujours se rapporter à une émission thermoélectrique ou a un effet tunnel. On donnera ici les relations relatives au courant de trous injecté dans le semi-conducteur.

La première loi est empruntée aux travaux de Dushman-Richardson sur l'émission thermo-ionique

$$j_{sp} = A^* T^2 \exp\left(\frac{\phi_b}{kT}\right)$$

Où :  $\phi_b$  est la hauteur de la barrière en eV entre le métal et le semi-conducteur de type p :  $\phi_b = \chi + E_g - W$  ( $W$  travail de sortie du métal,  $\chi$  affinité électronique du semi-conducteur,  $E_g$  gap du semi-conducteur)  $A^*$  est la constante de Richardson  $A^* = \frac{4\pi m_p q k^2}{h^3}$  avec  $m_p$  masse effective du trou.

L'injection schottky prend en compte l'abaissement de la barrière de potentiel par effet de champ. Ces mécanismes sont dus à la force image et à d'éventuels couches dipolaires à l'interface métal/semi-conducteur. La quantité par laquelle la barrière est réduite est donné dans ATLAS par la relation

$$\Delta\phi_b = \beta \left(\frac{q}{4\pi\epsilon_s}\right)^{\frac{1}{2}} E^{\frac{1}{2}} + \alpha E^\gamma$$

Où  $E$  est le champ électrique à l'interface.  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  sont des constantes qui dépendent du semi conducteur par défaut  $\beta = \gamma = 1$  et  $\alpha = 0$ .

On peut aussi tenir compte de l'injection par effet tunnel à travers la barrière, dans ce cas pour un potentiel  $V$  appliqué, ATLAS utilise comme expression l'équation donnée par Tsu-Esaki [15]

$$J_{tp} = -\frac{4\pi q m_p kT}{h^3} \int_0^{\phi_b} P(E)N(E)dE$$

$$\text{Avec } N(E) = \ln \left( \frac{1 + \exp\left(\frac{E_F - E}{kT}\right)}{1 + \exp\left(\frac{E_F - E - qV}{kT}\right)} \right)$$

La probabilité de transmission  $P(E)$  est donnée par l'approximation de Wentzel, Kramers et Brillouin pour une barrière triangulaire :

$$P(E) = \exp \left( \frac{-8\pi\sqrt{2m_p}(\phi_b - E)^{3/2}}{3qh\phi_b} \right)$$

### **III.5. Le module dédié à l'électronique organique.**

Nous allons ici donner les modèles utilisés dans ATLAS pour les transistors organiques, en particulier pour la structure de bande et pour la mobilité dans les milieux organiques désordonnés.

#### **III.5.1. La structure de bande**

La densité des états dans la bande de valence et dans la bande de conduction est décrite par une fonction gaussienne [16]. Pour la densité des trous on a :

$$g_v(E_v - E) = \frac{N_{VA}}{\sqrt{2\pi}\sigma_v} \exp \left( -\frac{(E_v - E)^2}{2\sigma_v^2} \right)$$

La densité des trous dans la bande de valence obéit à la statistique de Fermi-Dirac donc si

$$f(E) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{E - E_F}{kT}\right)} \text{ alors :}$$

$$p = \int_{-\infty}^{+\infty} g_v(E_v - E)(1 - f(E))dE$$

Les mêmes équations peuvent être écrites pour les électrons on peut cependant dans ATLAS préciser ce modèle et utiliser une double distribution.

### III.5.2. La distribution en énergie des défauts

Le transport dans les semi-conducteurs organiques amorphes est généralement décrit comme une conduction par saut entre états localisés dues à des défauts. La DOS (Densité des états) est ainsi composée d'une bande de conduction accepteuse d'électrons et d'une bande de valence donneuse d'électrons. Dans ATLAS il est possible de mettre en œuvre deux distributions de défauts. Une distribution pour laquelle les défauts sont caractérisés par une densité et une température [17] (modèle que nous n'avons pas mis en œuvre) et un autre modèle [18], dérivée des équations de Miller Abrahams sur la probabilité de saut à distance variable entre états localisés. Ces équations suggèrent que les porteurs passent d'états localisés profonds à des états localisés moins profonds qui jouent un rôle dans le transport. La probabilité de saut décroît exponentiellement avec la différence de profondeur des pièges et la distance entre le site de départ et d'arrivée. Un porteur va donc préférentiellement sauter vers un site qui correspond à une combinaison optimisée entre la distance et la différence d'énergie. Cette combinaison dépend de la température, du rayon définissant la localisation d'un porteur  $1/\gamma$  [19] (extension spatiale de la fonction d'onde), et de la distribution dans la DOS. Il a ainsi été démontré qu'un porteur va plus probablement passer d'un état occupé à un état vide si celui-ci appartient au niveau de transport d'énergie  $E_{tr}$  donné par l'équation :

$$\int_{-\infty}^{E_{tr}} g(E)(E_{tr} - E)^3 = \frac{6}{\pi}(\gamma kT)^3$$

Où  $g(E)$  est la densité des états dans la DOS pour les trous ou pour les électrons. Cette équation est obtenue dans l'hypothèse d'une densité de porteurs faible qui permet de négliger le remplissage des états localisés. La valeur estimée dans ATLAS pour  $1/\gamma$  est de  $3\text{\AA}$  pour les trous comme pour les électrons.

La densité des états peut dans ce cas être représentée par la somme de deux gaussiennes que ce soit pour la bande de valence ou pour la bande de conduction.

Pour la bande de valence on écrira :

$$g_D(E) = \frac{N_1}{\sqrt{2\pi}\sigma_1} \exp\left[-\frac{(E_v - E)^2}{2\sigma_1^2}\right] + \frac{N_2}{\sqrt{2\pi}\sigma_2} \exp\left[-\frac{(E_v - E + E_D)^2}{2\sigma_2^2}\right]$$

Dans ce cas la première gaussienne décrit les zones ordonnées (grain de pentacène) et la seconde les zones amorphes (joints de grain). Donc  $\sigma_2 \gg \sigma_1$  et pour les matériaux très organisés (forte régio-régularité pour les polymères ou monocristaux pour les petites molécules)  $N_1$  sera très grand devant  $N_2$ . Pour la simulation et parce qu'il nous est impossible de faire la distinction on ne prendra qu'une seule valeur. On travaillera avec  $N_1$  voisin de la valeur expérimentale trouvée et  $N_2$  égale à 0 en pensant que la conductivité est surtout limitée par les joints de grain.

### III.5.3. La mobilité, modèle de Pool Frenkel

Dans le modèle du transport par saut on peut maintenant donner la mobilité des porteurs indépendamment du champ qui est donné par les travaux de Arkhipov. Pour les trous on aura :

$$\mu_{0p} = \frac{qv_0}{kT} \left[ \int_{-\infty}^{E_{tr}} g_D(E) dE \right]^{-2/3} \exp \left[ -2 \left( \frac{3}{4\pi} \right)^{1/3} \gamma \left[ \int_{-\infty}^{E_{tr}} g_D(E) dE \right]^{-1/3} \right]$$

Où  $v_0$  est la fréquence des « tentatives » de sauts, elle est de l'ordre de  $10^{11}$  Hz mais reste un paramètre ajustable en fonction des résultats expérimentaux à notre disposition.

La mobilité Poole- Frenkel est la première théorie, sur la mobilité dans les isolants, établit en 1938 par Frenkel [20], pour expliquer l'augmentation de la conductivité dans les isolants et les semi-conducteurs lors d'une application d'un champ électrique élevé. Elle est historiquement donnée par la formule suivant :

$$\mu = \mu_0 \exp(\gamma \sqrt{E})$$

Où  $\mu_0$  et  $\gamma$  sont les paramètres qui dépendent de la physique du système considéré, et  $E$  le champ électrique. Le modèle Pool-Frenkel a été largement étudié pour la modélisation de transport de charge dans les diodes électroluminescentes organiques à semi-conducteurs désordonnés [21,22,23], mais il peut aussi décrire les résultats expérimentaux pour les transistors organiques à effet de champ, qui montrent une variation de la mobilité avec le champ électrique appliqué entre la source et le drain [24,25,26].

Comme on vient de l'écrire, dans les semi-conducteur désordonnés le transport de charge se fait principalement par saut entre les états localisés qui sont induits par le désordre. Pour un transistor, l'effet du champ électrique appliqué entre le drain et la source est de réduire la hauteur de la barrière de saut. La probabilité de saut et donc la mobilité dépend du champ électrique pour

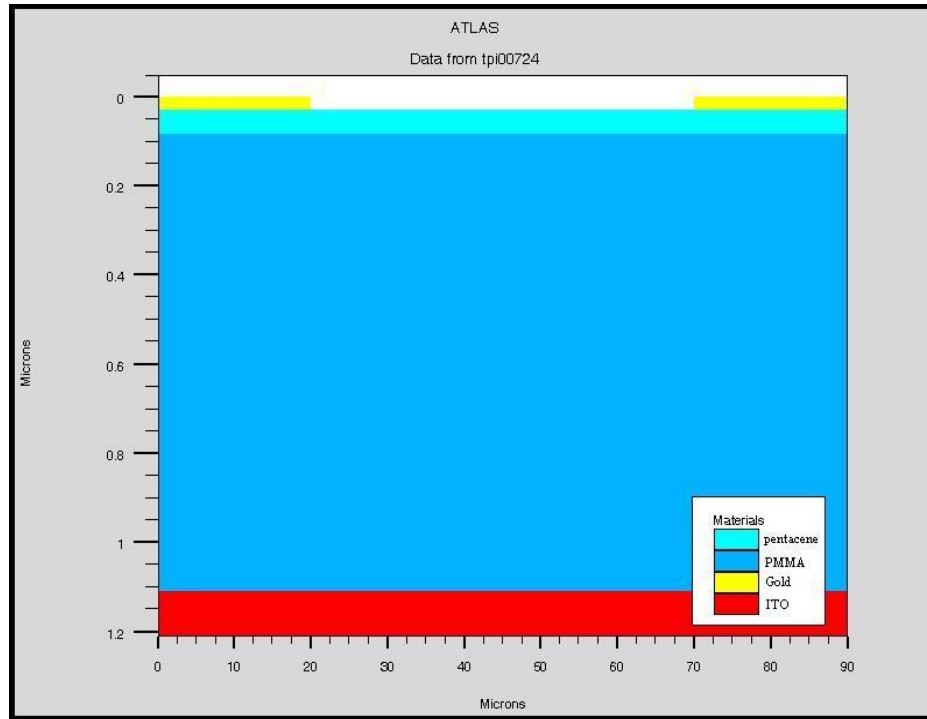
les semi-conducteurs organiques. La loi « de Pool-Frenkel » retenue [27,28] pour la simulation est la suivante :

$$\mu_p = \mu_{0p} \exp \left( -\frac{E_a}{kT} + \frac{q\sqrt{q/\pi\epsilon}}{kT} \sqrt{E} \right)$$

Où  $E_a$  est l'énergie d'activation sans champ, c'est-à-dire la hauteur moyenne qu'un porteur doit franchir pour passer d'un site à un autre,  $\epsilon$  est la permittivité du semi-conducteur,  $\mu_{0p}$  est la mobilité sans champ.

### III.6. Procédure de simulation

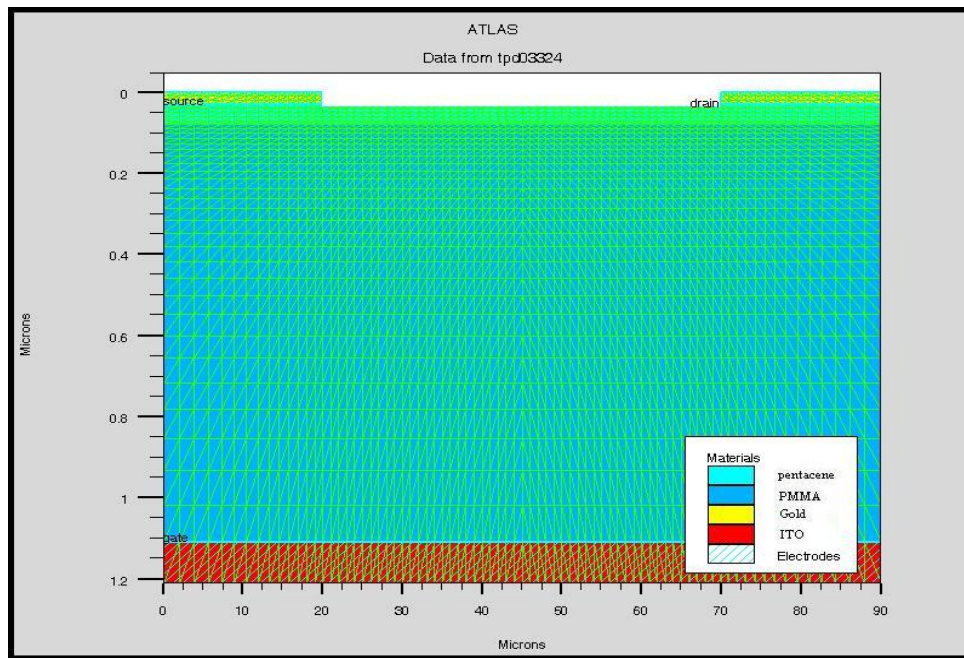
Pour commencer une simulation, la structure géométrique et les dimensions du dispositif doivent être définies en spécifiant l'emplacement des électrodes, l'épaisseur, la géométrie et les caractéristiques physiques des différentes couches. L'outil Tonyplot permet la visualisation du transistor organique en structure 'top contact' (figure 10)



**Figure 10.** Structure du transistor OTFT simulé par ATLAS où la longueur du canal est de 50 $\mu$ m, l'épaisseur de l'isolant est de 1 $\mu$ m et l'épaisseur de pentacène est de 50nm.

Une fois les caractéristiques principales des matériaux, et les dimensions entrées, les régions internes doivent être décomposées en maille. La maille est composée d'une grille

complexe de triangles. A chaque nœud (coin de triangle) les propriétés électriques sont calculées. La densité des triangles doit être adaptée à la complexité de la physique de la région et du dispositif à étudier. Par exemple, la frontière entre l'oxyde et le semi-conducteur est un endroit crucial, il s'y produit l'accumulation et le transport. Par conséquent, la densité de la maille devra être élevée à cet endroit comparé à d'autres régions. Le substrat est un secteur d'activité réduite et se composera donc d'un maillage de plus faible densité. La définition du maillage est une partie du programme qui a besoin d'être optimisée. Une mauvaise définition de maille donne des résultats imprécis et ne permet pas toujours au calcul de converger, alors qu'un maillage trop dense donne un temps d'exécution de la simulation prohibitif. En outre, il y a une limite supérieure au nombre total de maille. Pour aider à l'entrée de ces premières données, des maillages prédéfinis sont proposés en fonction du composant à étudier. On donne sur la figure 11 le maillage pour le transistor organique dont la structure a été définie à la figure 10.



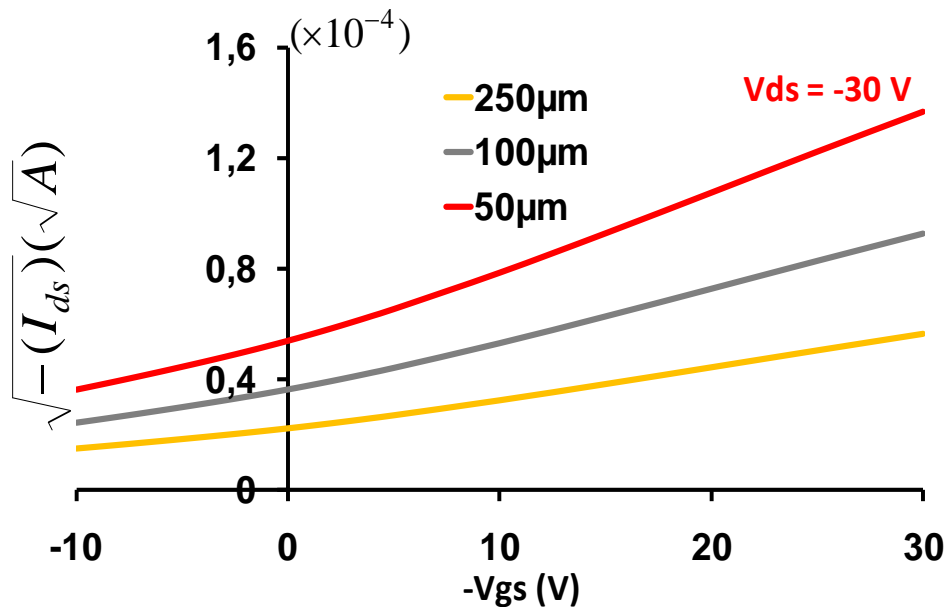
**Figure 11.** Exemple de maillage de la structure du transistor organique.

### **III.6.1. Simulation avec les paramètres prédéfinis**

La simulation du transistor est menée avec les caractéristiques géométriques testées expérimentalement et dont les caractéristiques sont données précédemment. Pour mémoire, les caractéristiques des OTFT à base de pentacène ont été relevées en fonction de la longueur du



canal ( $L = 50, 100, 250 \text{ nm}$ ) pour une épaisseur de pentacène de  $50 \text{ nm}$ . L'épaisseur du PMMA vaut  $1 \mu\text{m}$ , la capacité par unité de surface est  $C_i = 2,3 \text{ nF/cm}^2$  (la capacité reste constante car on travaille uniquement en régime d'accumulation). Dans un premier temps, les grandeurs prédéfinies dans le logiciel ATLAS sont utilisées pour la simulation. En effet le pentacène qui est la molécule semi-conductrice la plus utilisée dans les OTFT est définie dans ATLAS. Finalement en précisant seulement les valeurs, du travail de sortie des électrodes de drain et de source en or ( $\phi = 5 \text{ eV}$ ), de grille en ITO ( $\phi = 4,5 \text{ eV}$ ) et la permittivité relative du PMMA ( $\epsilon_r = 2,6$ ) les caractéristiques de transfert de la figure 12 ont été obtenues pour les 3 différentes longueurs du canal.



**Figure 12.** Caractéristiques de transfert d'OTFT obtenues à partir des caractéristiques physiques et électroniques des matériaux données par défaut dans ATLAS.

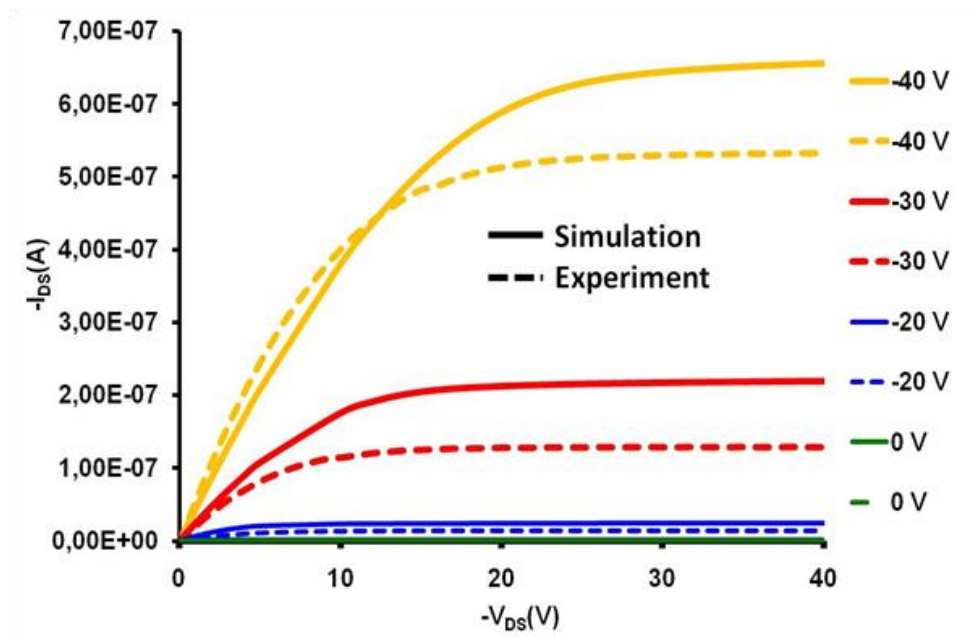
Les caractéristiques simulées sont très loin de ce qui est obtenu expérimentalement figure 4.a. Un travail d'ajustement de paramètres de la couche active est donc nécessaire.

### III.6.2. Ajustement des paramètres pour la simulation

Nous avons pu constater que certaines valeurs entrées par défaut ne correspondent pas à celle déterminées par nos soins ou encore relevées dans la littérature. Les caractéristiques du pentacène ont été entrées comme indiqué dans le tableau 4.

Pentacène	Energie de gap	1,8 e.V
	Permittivité	4
	Affinités électroniques	3,2 e.V
	$N_C$ et $N_V$	$2,88 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$
PMMA	Permittivité	3,9 e.V
Electrodes		
ITO	Travail de sortie	4,3 e. V
Au		5 e.V

**Tableau 4.** Paramètres utilisés pour la simulation de transistors organiques.



**Figure 13:** Caractéristiques de sorties d'OTFTs : expérimentale (en traits pointillés) vs. Simulation numérique (en traits plein).  $V_{GS}$  varie de 0 à -40V pour un OTFT dont le canal a une largeur  $W=4\text{mm}$  et une longueur  $L=50 \mu\text{m}$ .

Avec les paramètres cités précédemment on obtient alors les caractéristiques de sortie de la figure 13. Si l'accord simulation expérience n'est pas encore réalisé, ce graphe montre bien les deux zones caractéristiques du fonctionnement du transistor. Il reste encore à définir correctement la DOS dans la simulation.

- la zone linéaire : elle est obtenue quand la tension de drain est inférieure à la tension de grille  $|V_{DS}| < |V_{GS}|$ , on dit que le courant de drain  $I_{DS}$  est proportionnel au potentiel  $V_{DS}$ .
- la zone de saturation : elle est obtenue lorsque la tension de grille devient inférieure à la tension de drain  $|V_{GS}| < |V_{DS}|$ .

On considère que le décalage entre les courbes expérimentale et théorique est du dans cette simulation au fait qu'il n'a pas été pris en compte les densités de pièges.

### III.6.3. Simulation avec densités de pièges

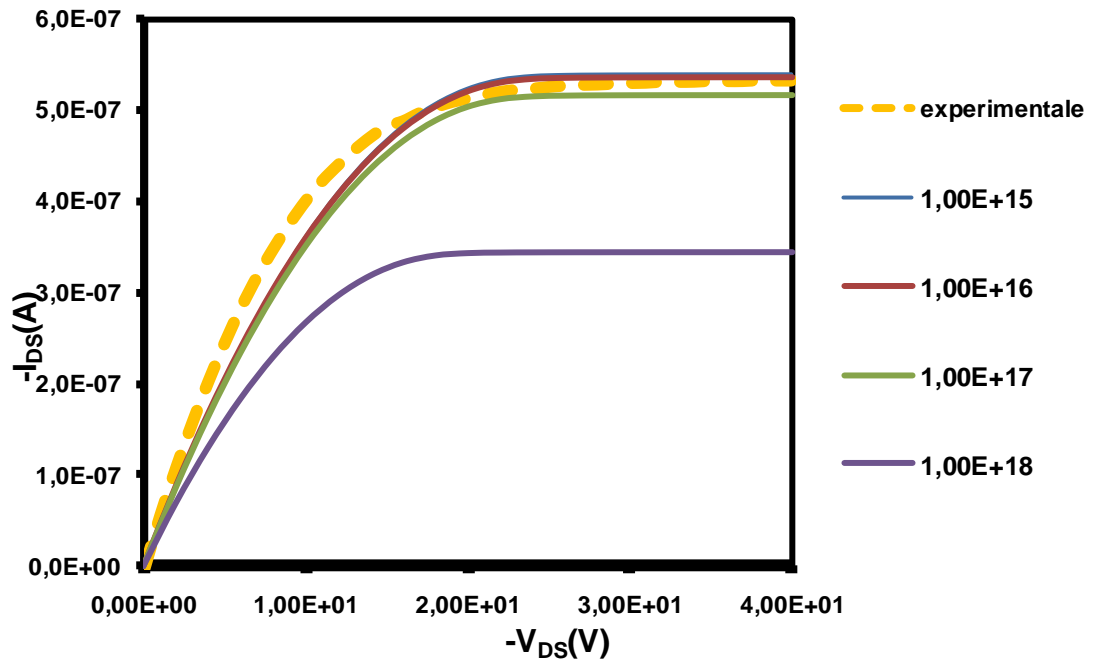
Il a été largement rapporté que les semi-conducteurs organiques contiennent de nombreux défauts comme en témoigne le tableau 5 ci-dessous.

Silinich [29]		Yang [9]	
Energies (e,V)	Densite (cm <sup>-3</sup> )	Energies (e,V)	Densite (cm <sup>-3</sup> )
0,35±0,05	3X10 <sup>14</sup>	1,08	9,6X10 <sup>14</sup>
0,28±0,05	4X10 <sup>14</sup>	0,31	6,5X10 <sup>15</sup>
0,21±0,03	1X10 <sup>15</sup>	0,24	4,2X10 <sup>15</sup>
0,06±0,02	4X10 <sup>15</sup>	-0,69	2,6X10 <sup>15</sup>
Silnisch [30]		Street [31]	
Energies (e,V)	Densite (cm <sup>-3</sup> )	Energies (e,V)	Densite (cm <sup>-3</sup> )
0,47±0,02	7X10 <sup>14</sup> - 2X10 <sup>15</sup>	~0,5	3X10 <sup>12</sup>
0,28±0,02	1X10 <sup>14</sup> -1X10 <sup>15</sup>	~0,5	2,2X10 <sup>12</sup>
0,23±0,02	(4,1 ± 3)X10 <sup>14</sup>		
0,11±0,02	(5,3 ± 2)X10 <sup>14</sup>		

Tableau 5. Densité et énergie des pièges rencontrés dans le pentacène d'après différent auteurs.

Dans ATLAS il nous faut entrer une densité de pièges pour la bande de valence et une énergie moyenne de la profondeur de ces pièges. Nous avons déterminé expérimentalement une densité de l'ordre de 10<sup>17</sup> cm<sup>-3</sup> ce qui peut paraître beaucoup comparé aux valeurs relevées dans

la littérature. Nous avons décidé de tracer les caractéristiques de sortie des transistors en fonction de la densité de piège pour une énergie de 0,19 eV que nous avons mesurée et qui nous semble raisonnable. La figure 14 montre le courant de drain en fonction de la tension de drain, pour différentes densités de pièges à  $V_{GS} = -40$ . On constate qu'une densité de pièges comprise entre  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$  et  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$  permet de faire parfaitement correspondre en régime de saturation la caractéristique expérimentale du transistor. Ces valeurs optimales de densités de pièges sont en bon accord avec les valeurs déterminées précédemment dans le chapitre I. On rappelle qu'une bonne définition de la DOS permet à la fois de déterminer le nombre de porteurs ainsi que la mobilité sans champ.

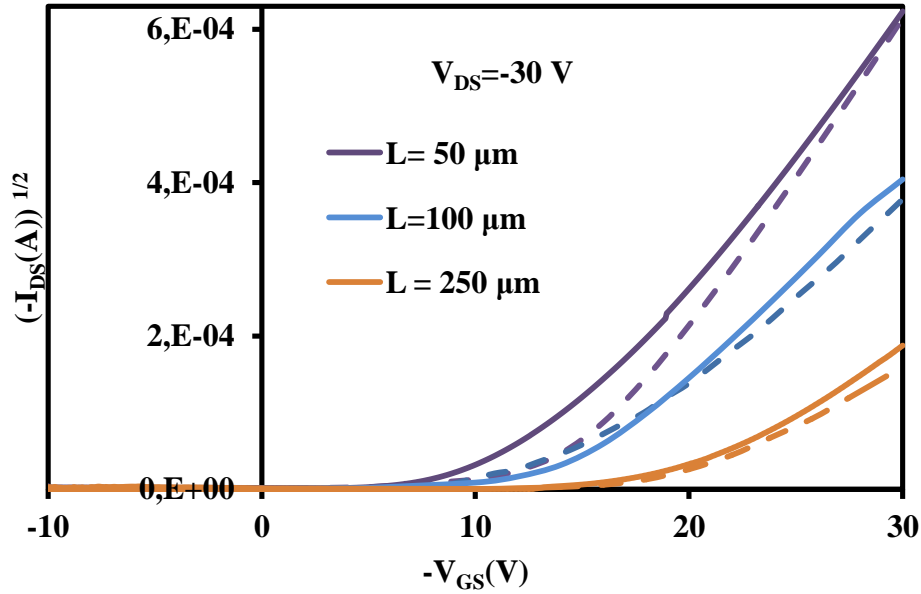


**Figure 14.** Caractéristique de sortie d'un OTFT dont la longueur de canal est de  $50\mu\text{m}$  en fonction de la densité des pièges.

#### **III.6.4. Caractéristiques de transfert en fonction de la longueur du canal**

On a représenté sur la figure 15 les caractéristiques de transfert en fonction de la longueur du canal en ayant ajustés les paramètres. On peut constater que les courbes expérimentales sont proche des courbes simulées. Dans les deux cas on retrouve bien les tendances générales pour lesquelles la diminution de la longueur du canal du transistor entraîne une réduction de la tension de seuil sans modifier la mobilité : en régime de saturation, la tension de seuil augmente de -16V

à -12V lorsque la longueur du canal diminue de 250 $\mu\text{m}$  à 50 $\mu\text{m}$ . Ainsi, du fait que la mobilité n'ait pas été modifiée à cette échelle de longueur du canal, le décalage de la tension de seuil vers les tensions positives est lié à la longueur du canal qui diminue et donc à un nombre plus important de porteurs ayant traversé le semi-conducteur car le temps de transit qui a diminué.



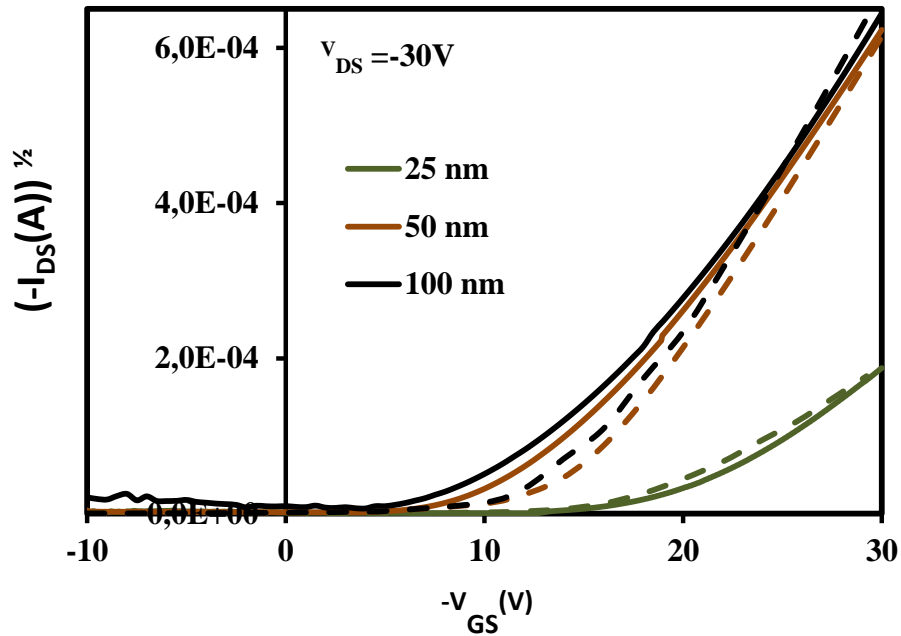
**Figure 15.** Caractéristique de transfert en fonction de la longueur de canal d'un OTFT à base de pentacène  
Expérimentale (en traits pleins) vs. Simulation numérique (en traits pointillés).

L( $\mu\text{m}$ )		$V_T$ (V)	$I_{on}/I_{off}$	$\mu_{sat}$ ( $\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ )	$\mu_{lin}$ ( $\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ )
50	Expérimental	-12	$10^4$	0,016	0,017
	Simulation	-13	$10^4$	0,017	0,017
100	Expérimental	-14	$10^4$	0,016	0,017
	Simulation	-13	$10^4$	0,0197	0,018
250	Expérimental	-16	$3 \cdot 10^4$	0,019	0,019
	Simulation	-16	$4 \cdot 10^4$	0,019	0,02

**Tableau 6.** Comparaison entre les paramètres obtenus par simulation et les paramètres obtenus expérimentalement.

### III.6.1. Caractéristiques de transfert en fonction de l'épaisseur du pentacène.

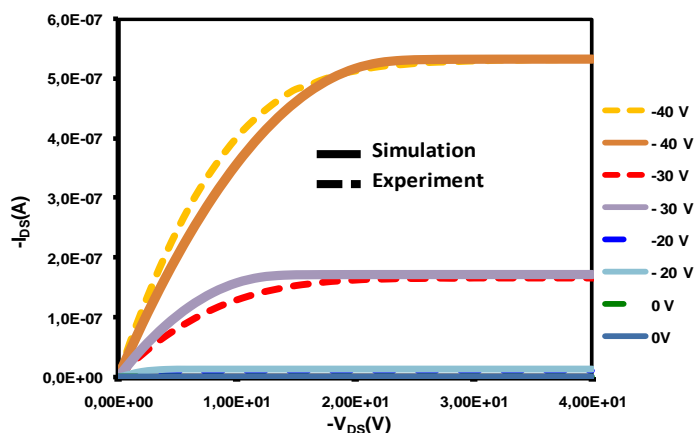
Sur la figure 16, nous présentons les courbes de transfert (simulées et expérimentales) en fonction de l'épaisseur de la couche active. Les paramètres de simulations utilisés donnent une bonne approximation du courant de drain en fonction de la tension de grille pour l'ensemble des épaisseurs considérées. De plus, l'augmentation de l'épaisseur de la couche du pentacène vérifie bien la nette amélioration des caractéristiques électriques des transistors : la tension de seuil et la mobilité augmentent avec les épaisseurs croissantes ( $\mu$  passe de  $10^{-3} \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  à  $2 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  lorsque l'épaisseur passe de 25 nm à 100 nm).



**Figure 16.** Représentation de  $(-I_{ds})^{1/2} = f(-V_{gs})$  pour trois épaisseurs de films de pentacène (25nm, 50nm et 100nm) à  $V_{ds}=-30V$ . Expérimentale (en traits plein) vs. Simulation numérique (en traits pointillés).

## IV. Conclusion

Une étude bibliographique a été effectuée afin de vérifier les caractéristiques physique et électronique du pentacène et aussi des électrodes et de l'isolant. Les valeurs ont été trouvées en particulier pour la densité des états dans la bande de valence. Après une intégration de ces paramètres dans le logiciel ATLAS nous avons remarqué que les simulations sont en accord avec les données trouvées pour les OFET fabriqués à base du pentacène. Nous avons pu vérifier à la fois les valeurs expérimentales sur la densité de pièges, la profondeur moyenne des pièges et l'effet de la longueur du canal sur les caractéristiques des transistors organiques. En conclusion, la simulation a prouvé que le logiciel ATLAS peut être utilisé pour la modélisation des OFET organiques à base du pentacène. Par curiosité, mais sans étudier en profondeur les modèles utilisés nous avons entré nos valeurs dans le logiciel proposé par l'université de Reims (Organic Transistor Model 0.2.9) par O. Simonetti, L. Giraudet et N. Dumelié nous avons alors obtenu les caractéristiques de sortie de la figure 17. L'accord entre la théorie et l'expérimentation nous autorise à dire qu'il est maintenant temps de faire confiance à la simulation pour les composants organiques et que les modèles sont pour la plupart parfaitement adaptés.



Energie de gap	1,8 e.V
Permittivité	4
Affinités électroniques	3,2 e.V
$N_C$ et $N_V$	$2,88 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$
densité des pièges	$1 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$

Figure 17. Simulation à partir du logiciel Organic Transistor Model 0.2.9.

## **V. Références Bibliographiques**

- [1] E. J. Meijer, D. M. De Leeuw, S. Setayesh, E. Va Veenendaal, B.-H. Huisman, P. W. M. Blom, J. C. Hummelen, U. Sherf, and T. M. Klapwijk “Solution-processed ambipolar organic field-effect transistors and inverters”, *Nature*, 2, 678, (2003).
- [2] J. B. Koo, J. H. Lee, C. H. Ku, S. C. Lim, S. H. Kim, J. W. Lim, S. J. Yun, T. Zyung “The effect of channel length on turn-on voltage in pentacene-based thin film transistor”, *Synth. Met.*, 156, 633, (2006).
- [3] C.D. Dimitrakopoulos and R.L. Malenfant Patrick, “Organic thin film transistors for large area electronics”, *Advanced Matter*, 14, 99-117, ( 2002).
- [4] R. Eisberg and R. Resnick, “Quantum Physics of Atoms, Molecules, Solids, Nuclei, and Particles”, 2nd ed., John Wiley & Sons, NY, (1985).
- [5] E.A. Silinsh and V. Čápek, “Organic Molecular Crystals”, *Their Electronic States.*, New York, (1980).
- [6] L. Sebastian, G. Weiser and H. Bässler, “Charge transfer transitions in solid tetracene and pentacene studied by electroabsorption”, *Chemical Physics*, 61, 125-135, (1981).
- [7] P.G. Schroeder, C.B. France, J.B. Park and B.A. Parkinson, “Energy level alignment and two-dimensional structure of pentacene on Au(111) surfaces”, *Appl. Phys. Lett.*, 91, 3010-3041, 2002.
- [8] C.D. Dimitrakopoulos and R.L. Malenfant Patrick, “Organic thin film transistors for large area electronics”, *Advanced Matter*, 14, 99-117, ( 2002).
- [9] Y.S. Yang, S.H. Kim, J. Lee, H.Y. Chu, L. Do, H. Lee, J. Oh, T. Zyung, K Ryu, and M.S. Jang, “Deep-level defect characteristics in pentacene organic thin films”, *Appl. Phys. Lett.*, 80, 1595-1597, ( 2002).



- [10] A.R. Brown, C.P. Jarrett, D.M. de Leeuw and M. Matters, “Field-effect transistors made from solution-processed organic semiconductors”, *Synthetic Metals*, 88, 37-55, (1997).
- [11] S. Yogev, E. Halpern, R. Matsubara, M. Nakamura, and Y. Rosenwaks, “Direct measurement of density of states in pentacene thin film transistors ” *Phys. Rev. B*, 84, 165124 (2011).
- [12] Simon. M. Sze, Kwok K. Ng, *Physics of semiconductor devices*, Ed. John Wiley and Sons 2006 ( 3e édition ), ISBN-13: 978-0471143239.
- [13] Henry Mathieu *Physique des semiconducteurs et des composants électroniques*, Éd. Dunod 2004 (5e édition) ISBN-13: 978-2100486335.
- [14] Selberherr, S. *Analysis and Simulation of Semiconductor Devices*. Wien, New York: Springer-Verlag, 1984.
- [15] R. Tsu, L. Esaki ‘Tunneling in a finite superlattice’ , *appl. Phys. Lett.* 22, 562 (1973).
- [16] van Mensfoort, S.L.M., and Coehoorn ‘Hole transport in polyfluorene-based sandwich-type devices: Quantitative analysis of the role of energetic disorder’ *Phys. Rev. B*, Vol. 78, 085207 ,(2008).
- [17] Shen J., and J. Yang, ‘Physical mechanisms in double-carrier trap-charge limited transport processes in organic electroluminescent devices’ *J. Appl. Phys.* Vol. 83, 7706-7714 (1998).
- [18] Arkhipov, V.I., P. Heremans, E.V. Emelianova, G.J. Adriaenssens, H. Bassler, ‘Charge carrier mobility in doped semiconducting polymers’ *J. Appl. Phys.* Vol. 82, 3245-3247 (2003).
- [19] Ambegaokar, V., N. I. Halperin, and J. S. Langer, ‘Hopping conductivity in disordered systems’, *Phys. Rev. B Solid State*, 4, 2612–2620, 1971.
- [20] J. Frenkel. “On pre-breakdown phenomena in insulator and electronic semiconductors” *Physical Review*, 54, 647–648, (1938).

[21] D.H. Dunlap, P. E. Parris, and V.M. Kenkre. “Charge-dipole model for the universal field dependence of mobilities in molecularly doped polymers” *Physical Review Letters*, 77, 542–545, (1996).

[22] L. B. Schein, A. Peled, and D. Glatz. “The electric field dependence of the mobility in molecularly doped polymers” *Journal of Applied Physics*, 66, 686–692, (1989).

[23] S.V. Novikov, D.H. Dunlap, V.M. Kenkre, P. E. Parris, and A.V. Vannikov. “Essential role of correlations in governing charge transport in disordered organic materials” *Physical Review Letters*, 81, 4472–4475, (1998).

[24] L. Wang, D. Fine, D. Basu, and A. Dodabalapur. “Electric-field-dependent charge transport in organic thin-film transistors”. *Journal of Applied Physics*, 101, 1–8, (2007).

[25] B. H. Hamadani, C. A. Richter, D. J. Gundlach, R. J. Kline, I. McCulloch, and M. Heeney. “Influence of source-drain electric field on mobility and charge transport in organic field-effect transistors” *Journal of Applied Physics*, 102, 1–7, (2007).

[26] B. H. Hamadani and D. Natelson. “Gated nonlinear transport in organic polymer field effect transistors” *Journal of Applied Physics*, 95, 1227–1232, (2007).

[27] Horowitz, G. ‘Organic Field-Effect transistors’, *Advanced Materials* Vol. 10, 365-377 (1998).

[28] Ruhstaller, B., S.A. Carter, S. Barth, H. Riel, W. Riess, J.C. Scott, ‘Transient and steady-state behavior of space charges in multilayer organic light-emitting diodes’, *J. Appl. Phys.* Vol. 89, 4575-4586, (2001):.

[29] I. Muzikante and E.A. Silinsh, “Investigation of local trapping states in organic molecular crystals by method of thermally modulated space-charge limited current”, *Acta Physica Polonica A*, vol. 88, 389-399, (1995).

---

[30] E.A. Silinsh, G.A. Shlihta and A.J. Jurgis, "A model description of charge carrier transport phenomena in organic molecular crystals. I. polyacene crystals", *Chemical Physics*, 138, 347-363, (1989).

[31] R.A. Street, D. Knipp and A.R. Völkel, "Hole transport in polycrystalline pentacene transistors", *Applied Physics Letters*, 80, 1658-1660, (2002).

---

---

# **Chapitre III : réalisations et caractérisations des inverseurs organiques à base du pentacène**

---

---



## **I. Introduction**

L'inverseur organique est la brique de base des circuits logiques, ce chapitre en traite l'étude à travers la fabrication d'inverseurs organique à base de pentacène. Les caractéristiques des inverseurs sont données en fonction des caractéristiques des deux transistors formant l'inverseur. Les problèmes liés à la reproductibilité des transistors seront discutés.

Avant de présenter les résultats expérimentaux un bref rappel sur les paramètres caractérisant les inverseurs sera donné. Les architectures communément utilisées seront présentées et une étude bibliographique donnera l'état de l'art. L'étude expérimentale des inverseurs est menée suivant la géométrie des transistors dans ce but. Le travail est fait en deux temps : le premier est de réaliser les transistors organiques de type p, à base de pentacène, dans structure géométrie top contact. Les caractéristiques électriques des transistors ont été étudiées en fonction de la longueur du canal, de l'épaisseur du pentacène. Le deuxième axe est de présenter les caractéristiques de l'inverseur à base de deux transistors top contact. Dans un premiers temps nous réalisons l'inverseur avec deux transistors identiques, après on discutera de l'effet de la longueur du canal et de l'épaisseur de la couche active sur l'inverseur et de ce qu'il est possible de faire en changeant d'isolant de grille.

## **II. Inverseurs organiques structure et mode de fonctionnement**

La porte logique « inverseur » comporte une entrée et une sortie. Sa fonction logique est d'inverser le signal logique reçu, un '1' logique en entrée (soit souvent une tension proche de la tension de polarisation du circuit) donne un '0' en sortie (soit une tension nulle ou voisine de 0) et un '0' en entrée donne un '1' en sortie. Cette porte logique est très importante en électronique numérique car elle est la base de toutes les portes logiques. Elle comporte au moins deux transistors (très exceptionnellement un

seul et une résistance). L'inverseur organique peut donc être réalisé à partir de deux transistors de types p selon quatre configurations « à charge active saturée », à « charge active non saturée », « à charge à déplétion » et à transistor complémentaire. Mais commençons par définir les paramètres caractéristiques des inverseurs et les notations qui seront utilisées tout au long de ce chapitre.

## **II.1. Définitions et caractéristique de transfert**

Pour la suite on adoptera les notations suivantes :

- Tension d'entrée :  $V_{in}$ .
- Tension de sortie :  $V_{out}$ .
- Tension de polarisation :  $V_{DD}$ .
- Tension de seuil ou d'inversion :  $V_{th}$  ou  $V_{trip}$  est obtenue pour  $V_{in} = V_{out}$  (figure1).
- En logique pMos Niveau logique « 1 » si  $V_{DD} < V < V_{th}$  et niveau logique « 0 » si  $V_{th} < V < 0$ .

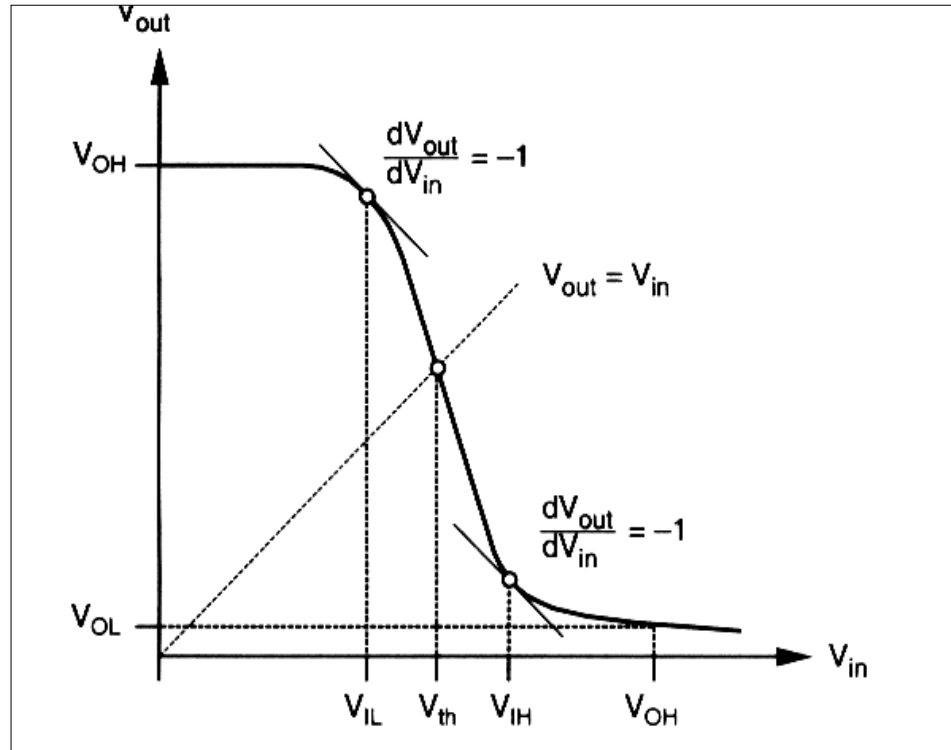
Dans ce chapitre nous nous proposons de comparer les différents montages inverseur à partir de la caractéristique de transfert, c'est-à-dire la tension de sortie ( $V_{out}$ ) en fonction de la tension d'entrée ( $V_{in}$ ). La figure 1 donne un exemple de ce que peut être cette caractéristique. On notera les différentes tensions caractérisant l'inverseur :

- $V_{IL}$  tension d'entrée maximale qui peut être interprétée comme un « 0 ».
- $V_{IH}$  tension d'entrée minimale qui peut être interprétée comme un « 1 ».
- $V_{OL}$  tension minimale de sortie.
- $V_{OH}$  tension maximale de sortie.
- Gain  $A_{max} = \left| \frac{\partial V_{out}}{\partial V_{in}} \right|$

Dans l'idéal le passage du niveau haut au niveau bas doit être le plus abrupte possible c'est-à-dire  $V_{IH}$  peut différent de  $V_{IL}$ , on définit alors les marges de bruit (Noise Margin) :

$$NM_H = |V_{OH} - V_{IH}| \text{ et } NM_L = |V_{IL} - V_{OL}|$$

Le but est d'avoir des marges de bruit les plus grandes possibles ce qui correspond bien à minimiser l'écart entre  $V_{IH}$  et  $V_{IL}$ .



**Figure 1.** Caractéristique de transfert d'un inverseur

On présente maintenant les différents types d'inverseur organique que nous avons testés pendant ce travail avec plus ou moins de succès.

## **II.2. Inverseur pMOS à charge active saturée**

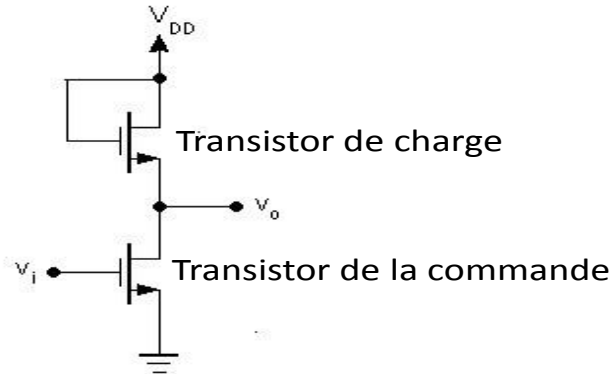
Le plus simple des inverseurs à fabriquer est l'inverseur à charge active saturée ou « diode load inverter » car il est composé de deux transistors qui peuvent être identiques. Il faut seulement une alimentation pour la polarisation et une alimentation sur l'entrée de l'inverseur, la grille du transistor de charge est reliée à la tension de polarisation de l'inverseur (figure 2). Le fonctionnement de ces inverseurs est dissymétrique suivant que l'on est à l'état haut ou à l'état bas :



- Lorsque la tension sur l'entrée de l'inverseur est à l'état haut ( $V_{in}=V_{DD}$ ), on a la même tension sur la grille du transistor de charge que sur la grille du transistor de commande. Si les deux transistors sont identiques le montage sera équivalent en sortie à deux résistances identiques en série et l'état bas correspondra à  $V_{out} = V_{DD}/2$  et la marge de bruit  $NM_L$  est quasi nulle.

- Si  $V_{in}$  est inférieure à la tension seuil du transistor de commande (état bas), le courant de drain de ce transistor ne pourra être supérieur au courant de fuite du transistor, seul le transistor de charge est « conducteur ». Avec des rapports  $I_{on}/I_{off}$  de  $10^4$  on a maintenant en sortie un pont diviseur de tension sur lequel la tension de sortie est mesurée sur la résistance 10 000 fois plus grande que l'autre donc  $V_{out}$  est peut différent de  $V_{DD}$  avec une marge de bruit  $HM_H$  qui correspond à la tension seuil.

Pour améliorer les caractéristiques de cet inverseur, il faut, que pour une même tension  $V_{DD}$  sur la grille, la chute de tension soit plus grande, dans le transistor de charge que dans le transistor de commande. Il suffit par exemple de diminuer la longueur du canal du transistor de commande par rapport à celle du transistor de charge.



**Figure 2.** Montage pour un inverseur à charge active saturée

La figure 2 illustre la caractéristique de transfert pour un inverseur à charge active saturée. Cet inverseur a un gain  $A_{max} = |dV_{out}/dV_{in}|$  qui n'est pas symétrique au niveau de la caractéristiques entrée-sortie. Dans cette étude [1] il faut savoir que le transistor de commande a une tension de seuil positive et plus grand que celle du transistor de charge.

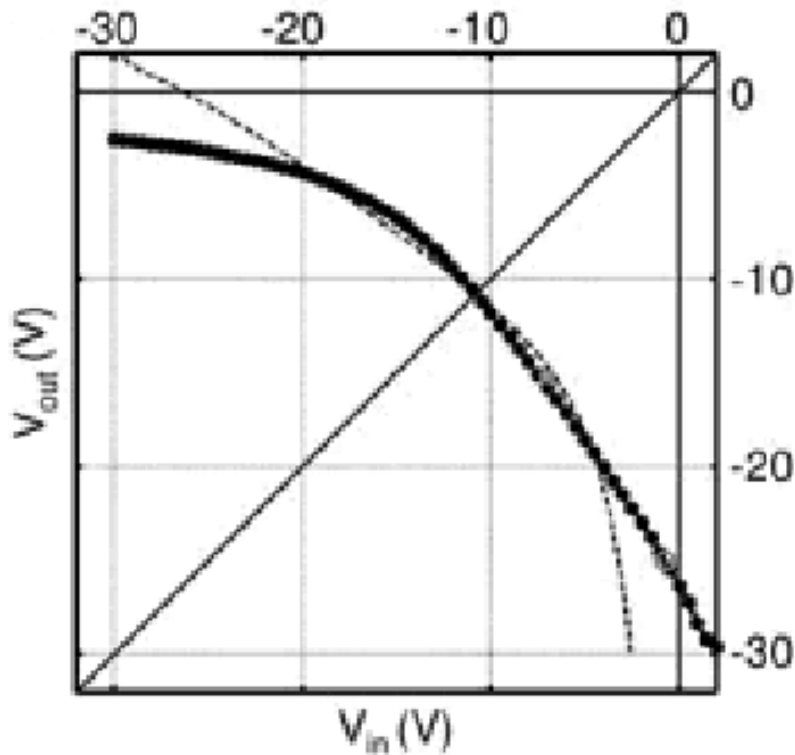


Figure 3. Caractéristique de transfert d'un inverseur à charge active saturée

### II.3. Inverseur pMOS à charge active non saturée

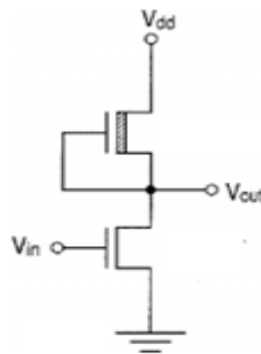
Dans ce cas l'alimentation du transistor de charge est indépendante de la tension  $V_{DD}$  on améliore les caractéristiques de l'inverseur en augmentant la résistance du transistor de charge par rapport à celle du transistor de commande. Dans ce cas  $V_G$  sur le transistor de charge doit être inférieur à  $V_{DD}$ .

### II.4. Inverseur à charge à déplétion [2]

Le circuit logique inverseur à charge à déplétion est en terme de gain plus performant que le transistor à charge active. Il est composé de deux transistors de même type mais avec des caractéristiques différentes (figure 4). Dans cette configuration, la grille du transistor de charge est reliée à la source et ce transistor conduit quand  $V_{GS}=0$ . Le fonctionnement s'explique comme suit :

- Si la tension d'entrée est égale à 0 V ( $V_{in} = 0V$ ) le transistor de commande ne conduit pas, la tension au niveau de la grille du transistor de charge va rapidement augmenter pour atteindre  $V_{DD} = V_{out}$  on a bien un 0 en entrée et un 1 en sortie.

- Si  $V_{in} = V_{DD}$ , le transistor de commande devient conducteur, un courant va traverser les deux transistors et  $V_{out}$  va chuter. Le transistor de charge voit sa résistance augmenter (résistance de canal) du fait de la diminution de la tension de grille  $V_{out}$  qui va tendre vers 0. Quand  $V_{in}$  est à l'état 1,  $V_{out}$  est bien à l'état 0



. **Figure 4.** Inverseur à charge à déplétion ou à  $V_{GS}=0$

Lorsque la sortie de l'inverseur affiche une amplification de tension, c'est-à-dire que le gain  $A_{max}=|\partial V_{out}/\partial V_{in}|$  est plus grand que 1, cet inverseur peut être utilisé pour piloter les inverseurs suivants sans perdre l'intégrité logique : la tension de sortie sera toujours voisine soit de 0 soit de  $V_{DD}$ .

Dans la figure 5, H. Klauk [2] présente la caractéristique de transfert typique, en continue, pour un inverseur organique de type p à charge à déplétion. Même si les notations sont différentes de celles définies : on peut voir que la différence entre  $V_{IL}$  et  $V_{IH}$  est très petite, que le gain est dans ce cas très important le problème est maintenant lié à la totale dissymétrie entre la marge de gain basse qui est très grande et la marge de gain haute qui est dans ce cas quasi inexistante.

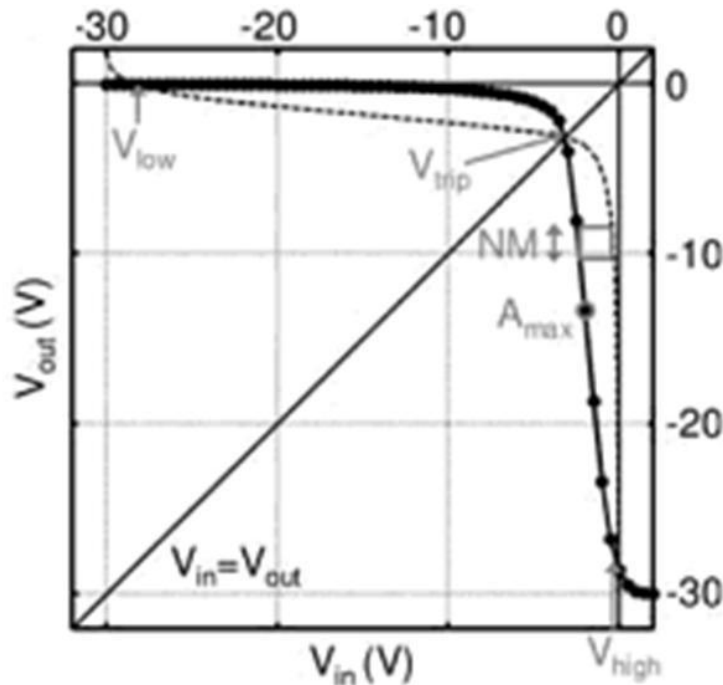
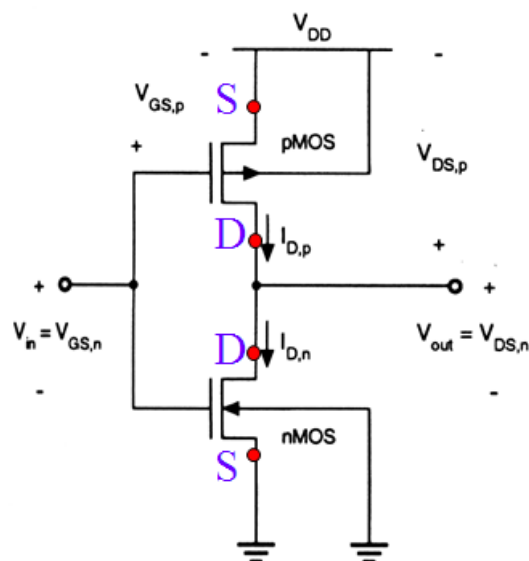


Figure 5. Caractéristique de transfert d'un inverseur à charge à déplétion

## II.5. Inverseur à transistors complémentaires (O-CMOS)

L'inverseur de type CMOS est actuellement le plus utilisé en logique à base de silicium. La principale raison est que dans un inverseur CMOS il ne passe pas de courant quand il est dans un état donné. Si on regarde le circuit fonctionnel de la figure 6 on voit que lorsque  $V_{in}$  est à l'état haut ( $V_{in} = V_{DD}$ ) seul le nMOS est conducteur et quand  $V_{in}$  est à l'état bas ( $V_{in} = 0V$  relié à la masse) seul le pMOS conduit donc le courant ne peut être que nul hors des instants de transition. Dans le cas de transistors organiques, il est difficile d'envisager d'appliquer une tension de polarisation sur le semi-conducteur organique mais il est possible de travailler avec une tension positive pour  $V_{OH}$  et une tension négative pour  $V_{OL}$ . La difficulté réside dans la mise en œuvre de semi-conducteurs organiques de type n stables ; nous n'avons pas, dans le cadre de ce travail réussi à faire fonctionner correctement des circuits à transistors complémentaires même s'il est possible, comme nous le verrons dans le paragraphe suivant, d'utiliser le caractère amphotère du pentacène déposé sur des polyvinyle alcool.



**Figure 6.** Schéma fonctionnel d'un inverseur de type CMOS

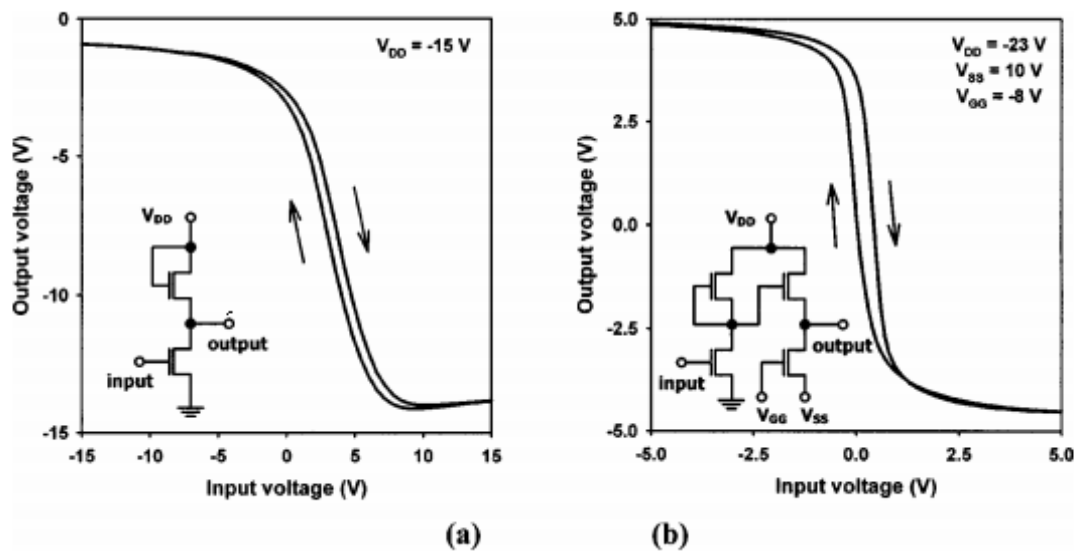
### **III. Etat de l'art sur les circuits intégrés organiques**

Nous allons ici faire un état de l'art sur les différents montages inverseurs à base de semi-conducteurs organiques en se focalisant principalement sur les inverseurs à base de pentacène. Pour chaque configuration décrite précédemment nous avons tenté de faire apparaître les meilleurs résultats publiés.

#### **III.1. Inverseur à charge active saturée**

Commençons par les travaux de Hagen Klauk [2] dont certaines figures du paragraphe précédent sont extraites. On citera ici un travail publié en 2003 par cette équipe de l'université d'Erlangen [3]. Deux configurations d'inverseurs différentes à base des molécules de pentacène (30nm d'épaisseurs) sont comparées. Les transistors sont réalisés sur des substrats de verre ou de PEN (polynaphtalate d'éthylène) avec de bonnes caractéristiques (mobilité à  $0,3\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  et des rapports en courant on/off à  $10^5$ ) ; le diélectrique utilisé est le PVP (poly-4-vinylphénol).

La figure 7a montre la caractéristique de transfert d'un inverseur à charge active saturé. Une différence géométrique importante entre le transistor de charge et le transistor de commande permet d'avoir des marges de bruit important mais la caractéristique est totalement décalée vers les tensions positives (il y a un «1» en sortie pour une tension d'entrée positive non nulle). Il est possible d'évaluer le gain max à environ 2 ce qui est très correct pour ce type d'inverseur. L'hystérésis de quelques centaines de millivolts est attribuée aux charges mobiles dans l'isolant de grille. Sur la Figure 7b on voit un montage avec un transistor à charge active non saturé et un décalage du niveau de fonctionnement en ajoutant un étage à l'inverseur. Dans ce cas où il est nécessaire d'utiliser au moins deux alimentations de polarisation ( $V_{GG}$  peut être connecté à la masse) la caractéristique de l'inverseur est nettement améliorée car le gain maximum atteint 12.



**Figure 7.** Configuration et caractéristiques de transfert des inverseurs (a) à charge active saturée, (b) à décalage du point de fonctionnement.

Un même circuit a été réalisé par S-H. Lee [4] (Université de Séoul), les transistors sont à base de 4-pentylphenylethynyl pentacène mieux connu sous l'acronyme PPE pentacène qui est étalé à la tournette. Le transistors (botom contact) T1 présente une mobilité sous champ égale à  $0,005 \text{ cm}^2/\text{V.s}$ , un gain en courant de  $10^6$ , et une tension seuil de 4 V et le deuxième transistor T2 pour lequel une SAM est intercalée entre les

contacts électriques et le PPE pentacène présente une mobilité égale à  $0,02 \text{ cm}^2/\text{V.s}$ , un gain en courant de  $10^7$  et une tension seuil de  $-4 \text{ V}$ .

La figure 8 illustre les caractéristiques de transfert et le gain maximum de cet inverseur qui est inférieur à 2 mais reste comparable aux gains obtenus avec du pentacène sublimé.

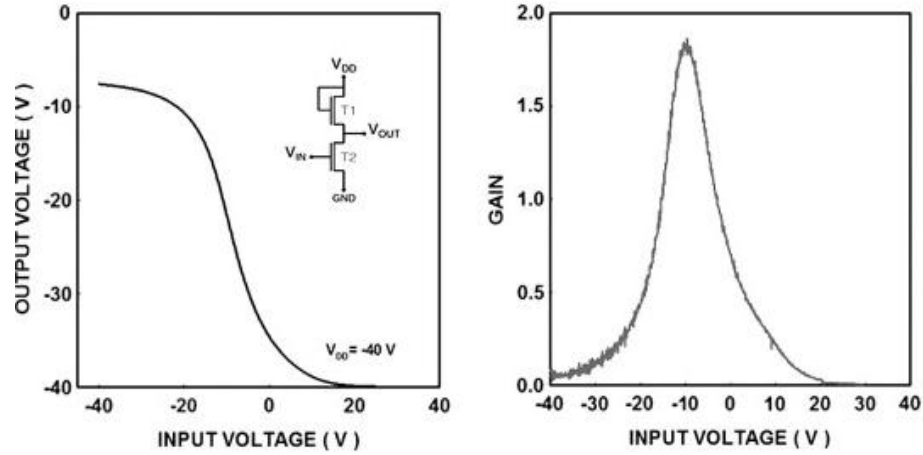


Figure 8. Caractéristiques de transfert et gain de l'inverseur.

On termine pour ce paragraphe par les travaux de K. Miny (université catholique de Louvain) dont l'intérêt réside dans l'implémentation de deux grilles [5] (une sur l'isolant et une sur le semi-conducteur). Ceci permet de polariser le substrat et de bien contrôler les tensions de travail.

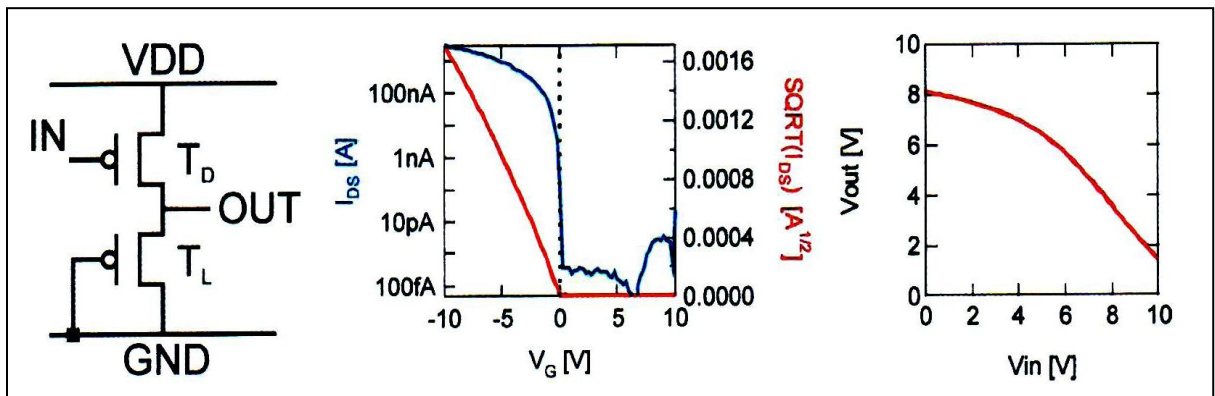


Figure 9. Caractéristique d'un inverseur à charge active saturée à double grille.

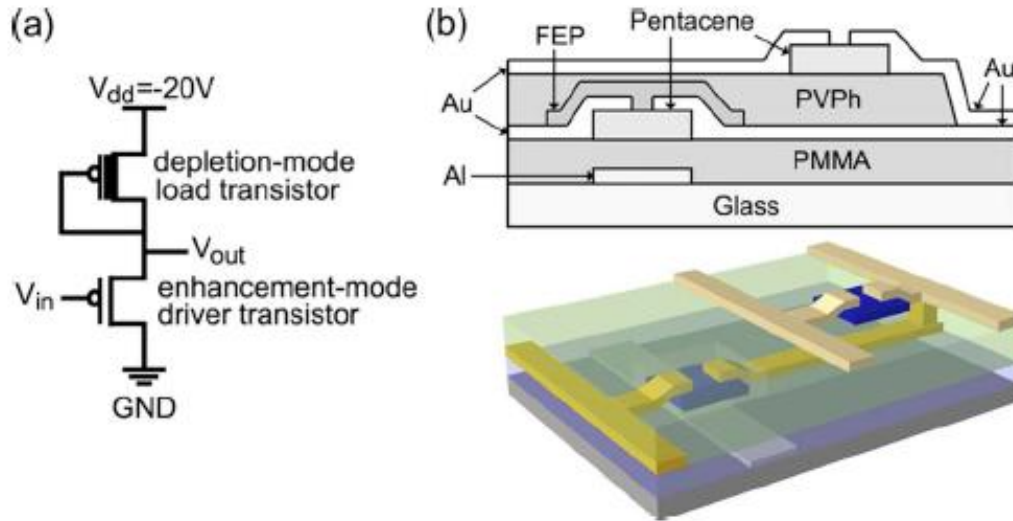
Si dans ce dernier cas les tensions de sortie sont bien repositionnées par rapport aux tensions d'entrées (figure 9) le gain est maintenant très faible c'est-à-dire voisin de 1 et donc les marges de bruit sont quasi nulles.

### **III.2. Inverseur à charge à déplétion**

Les inverseurs organiques à charge active saturée présentent des gains faibles de l'ordre de 2 au maximum et il reste difficile de travailler entre une tension nulle pour le « 0 » logique et une tension voisine de la tension de polarisation pour le « 1 » logique. Le montage dit à charge à déplétion ou encore à  $V_{GS}$  nulle donc été largement étudié. La difficulté réside dans le fait que les deux transistors doivent posséder des caractéristiques différentes : sans appliquer de tension sur les grilles, le transistor de charge doit présenter une résistance drain source bien inférieure à celle du transistor de commande. La solution consiste souvent à jouer sur la tension seuil des transistors. Dans l'idéal si la tension seuil du transistor de charge est positive et la tension seuil du transistor de commande est négative l'inverseur fonctionnera.

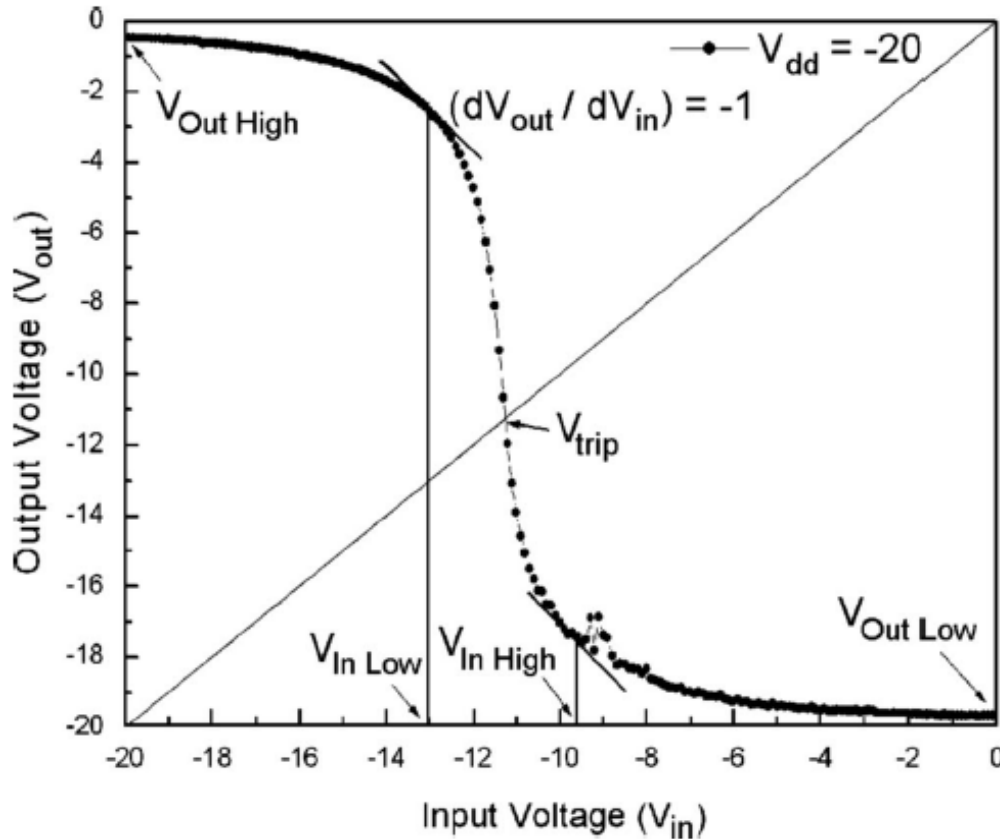
Dans le cadre des OTFT plusieurs solutions ont été testées avec succès. La première consiste à utiliser deux isolants de grille différents c'est ainsi que C. Baek et S-M. Seo (Université de Séoul) ont fabriqué un inverseur à charge à déplétion à base de pentacène constitué d'un transistor de commande avec comme isolant de grille du PMMA et d'un transistor de charge avec comme isolant de grille le PVP [6]. La fabrication de cet inverseur est simple et permet une grande intégration car sa structure est verticale (figure 10).





**Figure 10.** Représentation schématique de l'inverseur proposé par Baek en structure verticale.

La courbe de transfert en tension de l'inverseur vertical est donnée sur la figure 11. Pour une tension d'alimentation  $V_{DD}$  de 20 V, on remarque que les tensions représentant les niveaux logiques sont proches des tensions d'alimentation. Le gain maximum de l'inverseur vertical est de 13,4. Les marges de bruit à haut niveau  $NM_H = V_{OH} - V_{IH}$  et à faible niveau  $NM_L = V_{IL} - V_{OL}$ , valent respectivement 9,4 V et 6,6 V.

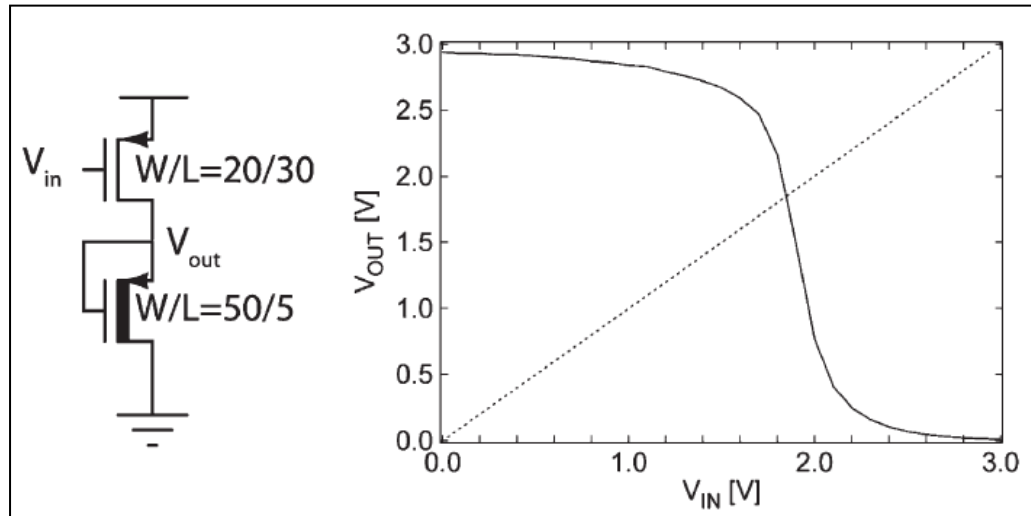


**Figure 11.** Caractéristique de transfert pour un inverseur à charge à déplétion où les OTFT sont fabriqués suivant une structure verticale avec des isolants différents.

Dans ce cas, le décalage de la tension seuil est expliqué par des charges piégées à l'interface isolant/semi-conducteur mais aucune étude n'a pour l'instant démontré de façon formelle cette hypothèse. Un autre travail du même style avait déjà été publié en 2006 par Cheon An Lee [7]. Les deux transistors sont fabriqués sur un substrat de silicium p fortement dopé, pour le transistor de commande une fine couche de PMMA est placée entre le SiO<sub>2</sub> et le pentacène ce qui a pour effet de diminuer fortement la tension seuil vers des valeurs négatives. Les inverseurs obtenus présentent des marges de bruit faible 2V pour un VDD de -20V et un gain maximum de 5,6. Ces inverseurs sont donc beaucoup moins performants que ceux présentés par C. Baek [6].

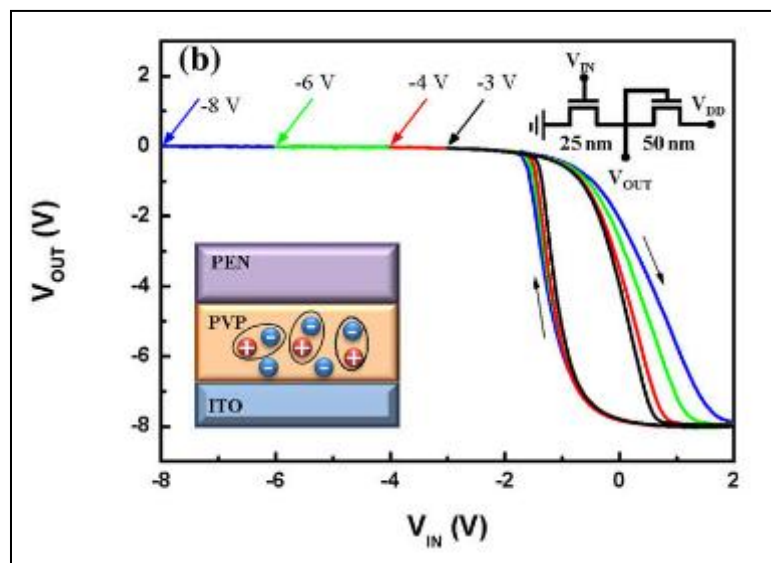
Une autre solution pour changer la tension seuil est d'utiliser des métaux de grille différents comme rappelé dans le chapitre 2. Ainsi I. Nausieda du M.I.T. a réalisé des inverseurs à base de pentacène pour lesquels la grille du transistor de charge est en platine et la grille du transistor de commande en aluminium [8]. L'isolant de grille est dans son étude du parylène, avec le platine il est parfois possible d'obtenir une tension de

grille positive ( $-0,16 < V_T < 0,23$ ) alors qu'avec l'aluminium la tension de grille est toujours négative ( $-0,72 < V_T < -0,43$ ) et inférieure à la tension de grille obtenue avec le platine. Les inverseurs obtenus avec des  $V_{DD}$  de 3V seulement (figure 12) présentent des gains de l'ordre de 7 avec des marges de bruit  $NM_H$  de 0,3 et  $NM_L$  de 1,3.



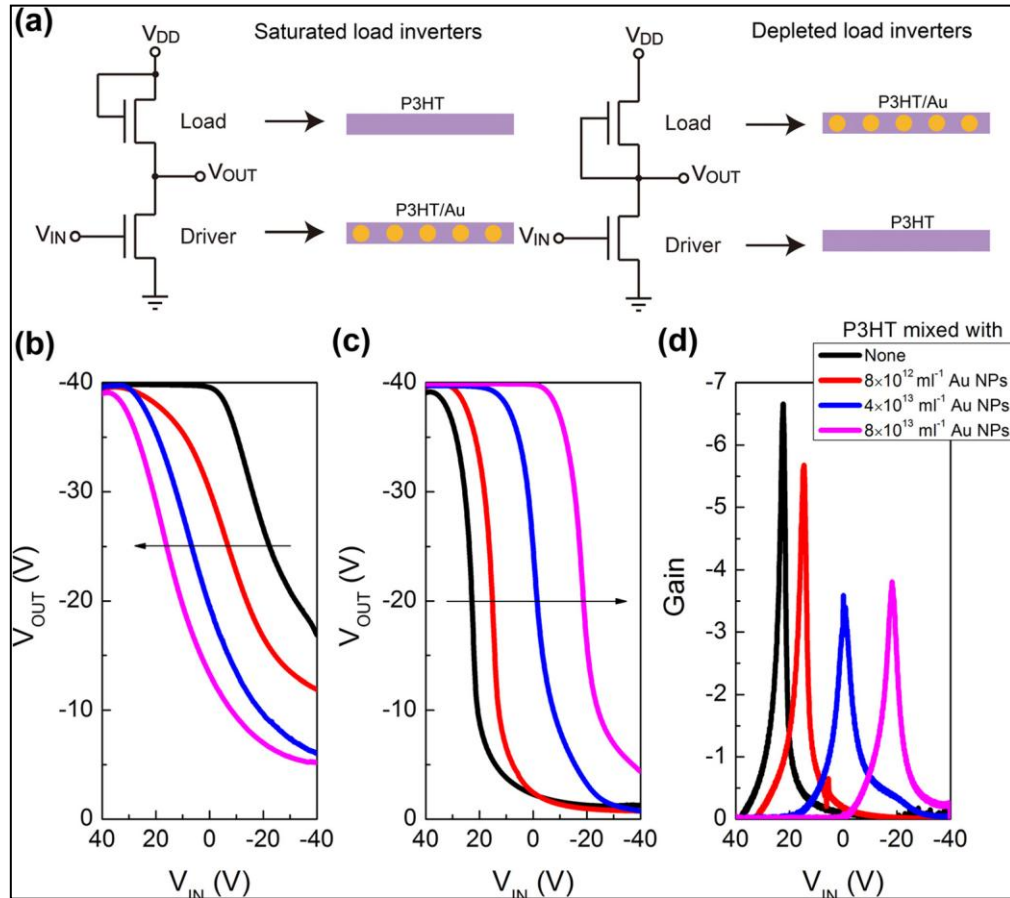
**Figure 12.** Caractéristique de transfert d'un inverseur organique dont la tension seuil est ajustée par le métal de grille.

Une autre solution simple qui nous est proposée est de jouer sur l'épaisseur de pentacène avec comme isolant soit du PVP soit AlOx. Sung-jin Mun de l'université de Séoul a publié une étude pour laquelle il obtient des inverseurs avec d'excellentes caractéristiques (figure 13). Ils sont constitués avec 50nm de pentacène pour le transistor de commande et 25nm de pentacène pour le transistor de charge avec comme isolant AlOx et inversement pour le PVP (50nm pour le transistor de charge et 25nm pour le transistor de commande). L'effet est attribué au caractère hydrophile de AlOx et hydrophobe du PVP.



**Figure 13.** Caractéristique de transfert d'un inverseur à base de pentacène (PEN) dont l'isolant est le PVP avec une épaisseur de pentacène de 25nm pour le transistor de commande et de 50nm pour le transistor de charge.

La dernière solution envisagée pour obtenir un inverseur à charge à déplétion est de changer les propriétés électroniques de la couche active en incorporant des nanoparticules d'or dans le semi-conducteur. Le concept fonctionne en mélangeant des nanoparticules d'or avec du P3HT dans le transistor de charge. Ce travail a été publié par Su-Ting Han [9] de l'université d'Hong Kong. Les tests ont été menés suivant les deux configurations : inverseur à charge active saturée et inverseur à charge à déplétion. Dans les deux cas et suivant la concentration en nanoparticule, la tension d'inversion peut être déplacée mais avec une chute du gain dans le cas des inverseurs à charge à déplétion (figure 14).



**Figure 14.** (a) Schéma des circuits de deux inverseurs unipolaire, (b) caractéristique de transfert des inverseurs à charge saturée, (c) caractéristique de transfert des inverseurs à charge à déplétion, (d) gain en tension de l'inverseur à charge à déplétion.

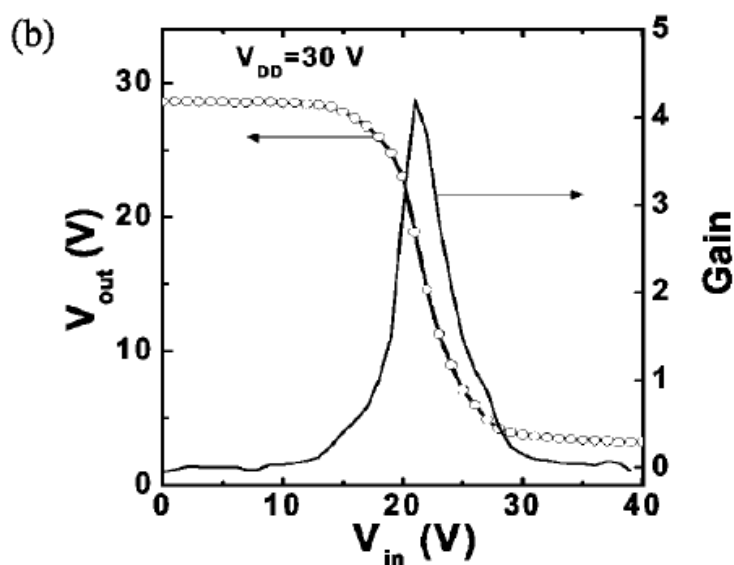
### III.3. Inverseur à transistors complémentaires (O-CMOS).

Comme nous allons le voir les inverseurs organiques à transistors complémentaires sont de loin ceux qui présentent les meilleures caractéristiques en terme de gain mais aussi de consommation électrique. Deux concepts ont été envisagés pour leur fabrication, soit l'utilisation d'un matériau organique de type p et d'un matériau organique de type n, soit l'utilisation d'un matériau ambipolaire ou amphotère.

#### III.3.1. Avec Semi-conducteurs organiques différents.

Historiquement les premiers circuits organiques ont été réalisés au Bell Laboratories par l'équipe de A. Dodabadapur et Z.Bao [10,11,12]. Le premier article sur

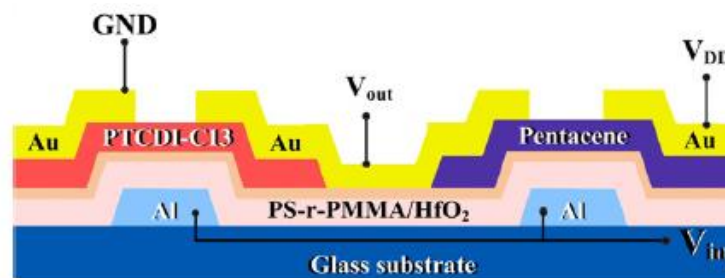
l'inverseur O-CMOS date de 1996, le matériau organique de type p était une phthalocyanine de cuivre et le matériau de type n un dérivé du naphthalène le naphthalène-tétracarboxylique-dianhydride plus connu sous l'acronyme NTCDA. Si les caractéristiques de transfert n'étaient pas « conventionnelles », le gain en tension était voisin de 4 avec des marges de bruit de 2,5V pour une tension de polarisation de 10V. Les matériaux utilisés dans les travaux suivant du Bell Labs étaient principalement des oligomères de thiophène pour le semi-conducteur de type p et une hexa-deca-fluoro-phthalocyanine de cuivre(  $F_{16}CuPC$ ) comme semi-conducteur de type n. Des circuits oscillateurs (fréquence d'oscillation de 20 à 50 Hz) ont été réalisés mais avec des tensions de polarisation très importantes (100V) et les inverseurs présentaient des gains de seulement 6. Pour trouver des performances nettement supérieures il faut attendre 2006 et les travaux publiés par des équipes américaines des universités de Californie (Los angeles et Standford) associé au Bell Labs [13]. Les inverseurs sont réalisés à partir de mono cristaux de tetramethylpentacène (TMPC) et de N,N'-di[2,4-difluorophenyl]-3,4,9,10-perylenetetracarboxylic diimide (PTCDI-C13). On peut voir figure 15 que pour des tensions de polarisation de 30V des gains de 30 sont obtenus sans hystérésis.



**Figure 15.** Caractéristique de transfert et gain d'un inverseur O-CMOS fabriqué à partir de monocristaux de TMPC et de PTCDI.

Pour minimiser les tensions de fonctionnement de ces inverseurs à deux matériaux semi-conducteur H. Klauk [14] propose de réaliser les transistors sur une grille en

alumine de 3,8nm d'épais recouvert d'une SAM de n-octadecyl phosphonique acide pour augmenter la valeur de la capacité. Les couches actives sont le pentacène et le  $F_{16}CuPC$ . Ces matériaux ont été utilisés avec l'isolant qui a une épaisseur totale de 5nm, et avec une tension de polarisation de 1,5V, un gain en tension de 100. Il s'agit ici du gain le plus élevé jamais publié pour une si faible tension de polarisation, dans le cas d'inverseur organiques. Dans le même but d'améliorer les caractéristiques des O-CMOS, des travaux ont été récemment publiés par T.H. Huang (Taiwan) où sont utilisés le PTCDI-C13 et le pentacène [15]. Dans ce cas l'isolant est organique (fine couche de Polystyrène-co-méthyl méthacrylate PS-r-PMMA) et recouvert d'une fine couche d'oxyde hafnium  $HfO_2$  qui permet d'augmenter significativement la permittivité de l'isolant (matériau « high k »). La structure de l'inverseur est donnée figure 16.

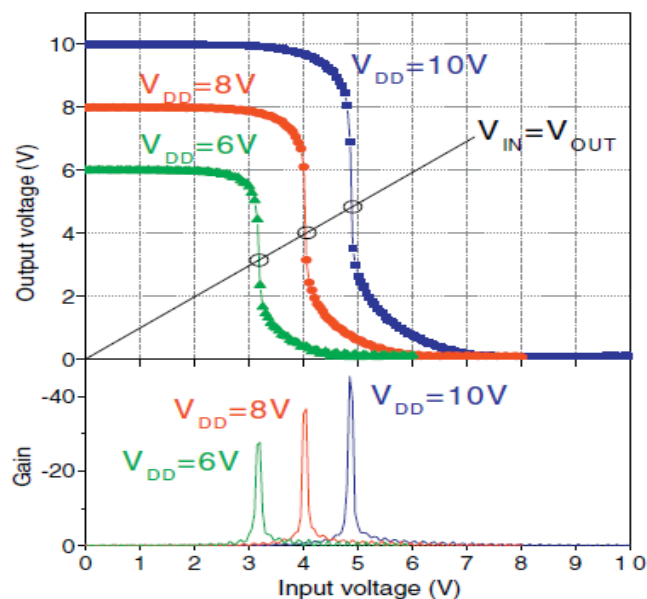


**Figure 16.** Structure de l'inverseur proposé par T.H. Huang.

Les performances et les caractéristiques de sortie pour l'inverseur sont présentées dans la figure 17, pour différentes tensions de polarisation (6, 8 et 10V). On constate que la tension de seuil de l'inverseur est égale à  $V_{DD}/2$  ce qui permet d'avoir des marges de bruit identiques. Le gain augmente avec  $V_{DD}$  de 30 à plus de 40 ce qui autorise des marges de bruit de plus de 40% du domaine de fonctionnement ( $NM_H = 40\%$  de 6V...).

Dans le cadre de l'amélioration des performances par une couche d'interface entre l'isolant et la couche active on peut citer les travaux de W.Y Chou [16] (Taiwan) dans lesquels il est montré qu'une fine couche de Polyimide (PI) déposée entre le  $SiO_2$  et les semi-conducteurs organique (pentacène et PCDTI) augmente les performances de l'inverseur. Dans ce cas il est montré que l'amélioration des performances est liée à la morphologie des couches actives pour lesquelles les grains monocristallins sont plus gros sur PI que directement sur  $SiO_2$ . Ceci est dû à une bonne homogénéité des films de

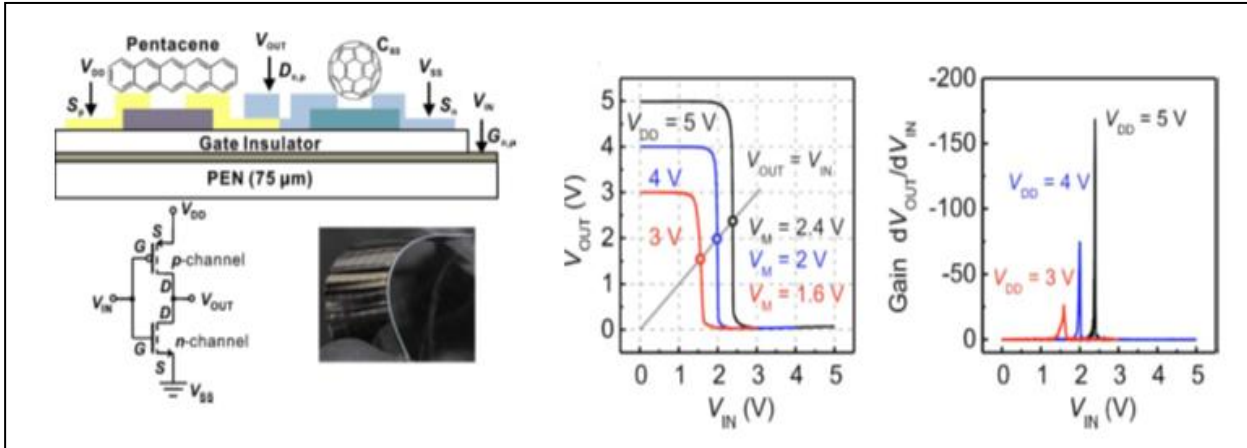
pentacène sur PI associée à une microstructure moléculaire supérieure [17]; la densité des pièges d'interface diminue d'où une faible tension seuil [18].



**Figure 17.** Caractéristique de transfert d'inverseur O-CMOS avec une couche d'interface de permittivité élevée.

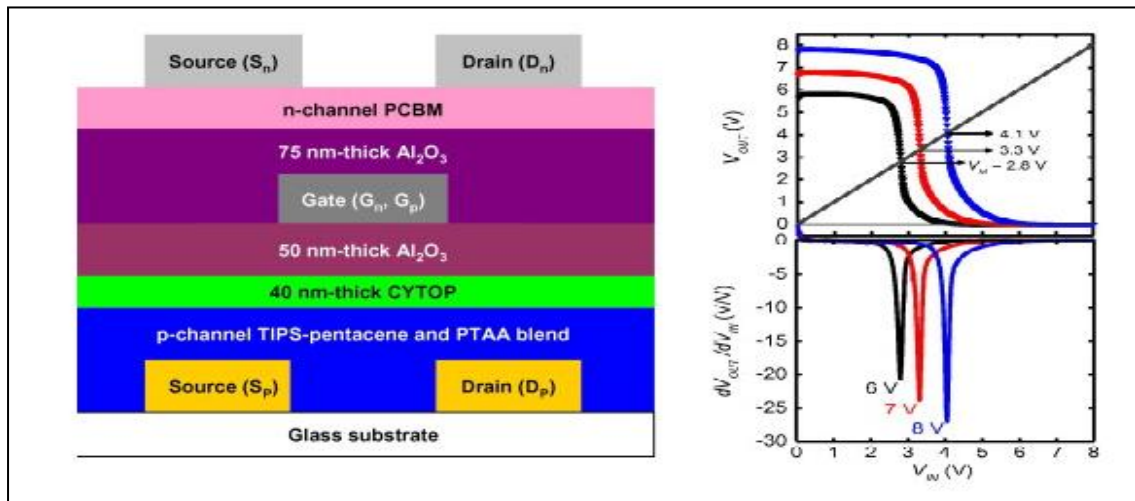
L'intérêt des organiques en dehors des seules performances réside également dans la possibilité d'utiliser des encres et de fabriquer les composants sur des substrats souples avec des architectures qui pourront être éventuellement originales. Les premiers travaux publiés d'inverseurs sur substrat souple l'ont été par H. Klauk en 2006 [19] où un inverseur à base de pentacène et de  $F_{16}CuPC$  est fabriqué sur du PEN. Les performances restent faibles (gain de 3 et marges de bruit de 2V pour une tension de polarisation de 8V). Des performances nettement meilleures ont été obtenues par Xiao-Hong Zhang (Georgia Tech) avec des inverseurs souples réalisés sur substrats de Poly-Ethylène Naphtalate (PEN) [20]. Les semi-conducteurs utilisés sont classiquement du pentacène et du C60 mais le diélectrique mis en œuvre consiste en une très fine couche d'alumine ( $Al_2O_3$ ) déposée par ALD (Atomic Layer Deposition). Cette couche d'épaisseur contrôlée à 200nm confère aux inverseurs (figure 18) des marges de bruit totales de 80% de la plage de tension, pour une tension de polarisation de 5V un gain de 180 a été atteint.





**Figure 18.** Structure et performance des inverseurs O-CMOS réalisé par X-H Zhang.

Dans un souci d'intégration, la même équipe de l'institut technologique de Géorgie [21] a démontré la possibilité de réaliser un inverseur vertical à partir de solution de PCBM pour le transistor à canal de type n ( $\mu=0.04 \text{ cm}^2/\text{V.s}$  et tension de seuil  $0.3 \text{ V}$ ) et de TIPS-pentacène/PTAA pour l'OTFT à canal de type p ( $\mu=0.25 \text{ cm}^2/\text{V.s}$  et tension de seuil  $-3.9 \text{ V}$ ). L'inverseur permet d'obtenir des gains entre 20 et 30 suivant la tension de polarisation (figure 19). Les marges de bruit élevées sont équilibrées pour une tensions de polarisations de  $7 \text{ V}$ . Les performances ne sont pas exceptionnelles mais chaque couche peut être imprimée ce qui autorise la fabrication d'inverseur bas coût.



**Figure 19.** Schéma de l'inverseur réalisé par J.B. Kim ainsi que ses caractéristiques de transfert et ses gains en fonction de la tension de polarisation.

Les travaux publiés récemment [22] traitent du contrôle de la morphologie de la couche active en contrôlant la vitesse de dépôt ainsi que la température de croissance pour obtenir des nano fils de phthalocyanine de cuivre comme semi-conducteur de type p et une  $F_{16}CuPC$  comme semi-conducteur de type n. Ces nano-fils autorise un meilleur «  $\pi$ - $\pi$  stacking » et donc des meilleurs performances des inverseurs. Des gains voisins de 20 ont été obtenus pour des tensions de polarisation de 50V ce qui est bien dans le cas des phthalocyanines surtout que les performances restent constantes après 30 jours à l'air.

### III.3.2. Avec un seul semi-conducteur organique.

En 2006, une nouvelle configuration a été réalisée par une équipe de l'université Johannes Kepler (Linz en Autriche) [23] en collaboration avec G. Horowitz de l'ITODYS . Ils ont utilisé la propriété qui veut que le pentacène déposé sur un polyalcool est amphotère. C'est ainsi que des transistors ambipolaires à base de molécules de pentacène présentant une mobilité de saturation égale à  $0,3 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  pour les trous et égale à  $0,04 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  pour les électrons ont été fabriqués. La figure 20 montre la nouvelle architecture de circuit, la courbe de transfert et le gain qui est autour de 10 pour une tension de polarisation  $V_{DD}$  de 100 V ou -100 V. Cette structure nous a semblé intéressante car elle permet de ne mettre en œuvre qu'un seul type de semi-conducteur.

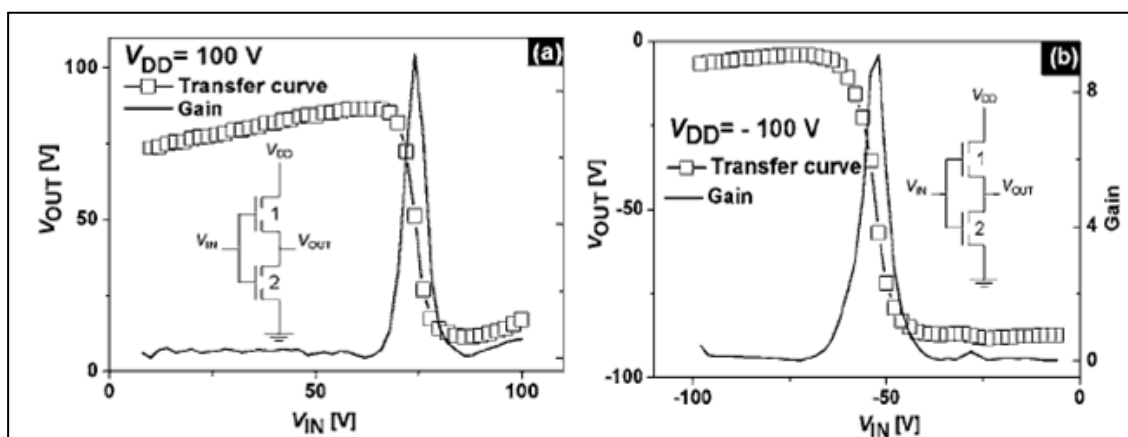
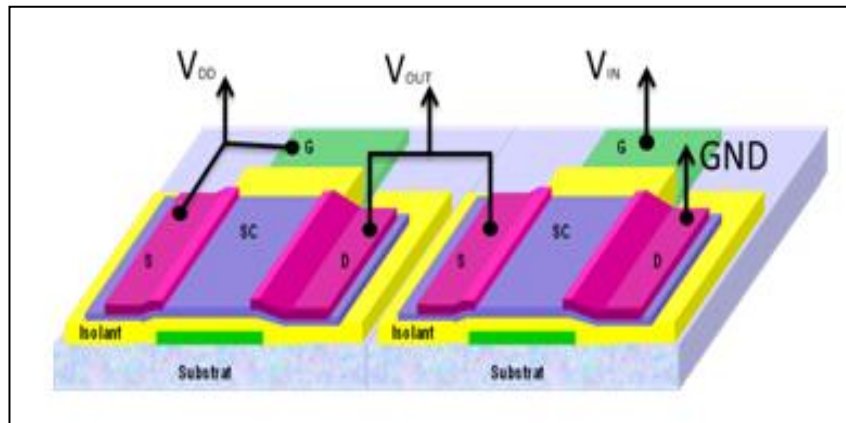


Figure 20. Caractéristiques d'un inverseur à base de transistors ambipolaires.

## **IV. Réalisation d'inverseurs organiques à charge active saturée**

Nous présentons dans ce paragraphe, les étapes de fabrication des inverseurs organiques à charge active saturée ou «diode load inverter». Ces inverseurs sont obtenues en associant deux transistors top-contact dont la fabrication a été brièvement décrite au chapitre 2.

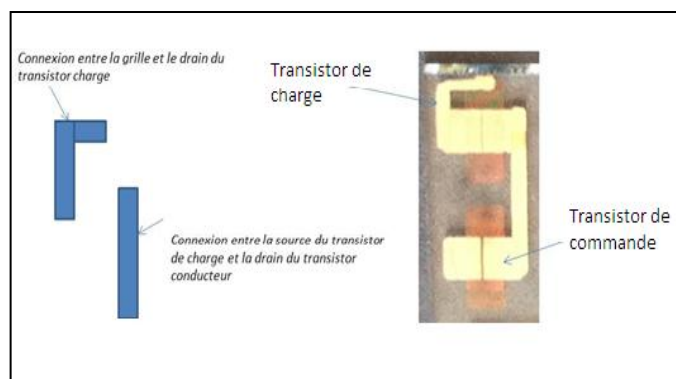
Je rappelle ici que ces transistors sont réalisés par l'empilement successif d'une couche conductrice d'ITO (électrode de grille transparente) d'une couche de PMMA (isolant de grille) d'épaisseur  $1\mu\text{m}$ , d'une couche de pentacène déposée par sublimation sous vide et pour finir les contacts en or sont évaporés figure 21.



**Figure 21.** Connexions et prises de contact à prévoir pour un inverseur à charge active saturée.

### **IV.1. Réalisation de l'inverseur**

Pour obtenir un inverseur à charge active saturée, il faut prévoir toutes les connexions prévues à cet effet (figure 21). Il a été décidé de réaliser les inverseurs sur un seul substrat. Un masque a été fabriqué pour réaliser la connexion entre les deux transistors et permettre ainsi l'application des tensions de polarisation et d'entrée du transistor de commande pour la mesure de la tension de sortie de l'inverseur. Les connexions sont assurées par une couche d'or de 100nm évaporée à travers un masque ouvert, une fois l'inverseur réalisé on obtient le circuit de la figure 22.



**Figure 22.** Masque et vue d'un circuit inverseur réalisé sur un substrat de verre recouvert d'ITO.

## **IV.2. Banc de caractérisation**

Les inverseurs et les transistors sont caractérisés à l'air libre (isolé par une cage de Faraday) et dans obscurité. Pour caractériser électriquement les circuits nous utilisons un Keithley 4200SCS comprenant 3SMU (Source Measure Unit) pouvant délivrer et mesurer des tensions et des courants respectivement dans les gammes : -100V +100V et 0 - 10mA. Pour la mesure de la tension de sortie  $V_{out}$  nous avons utilisé un voltmètre avec une forte impédance d'entrée ( $10^{14}\Omega$ ) car les résistances drain source des transistors organiques sont souvent importantes en particulier pour les  $V_{GS}$  faibles.

## **IV.3. Caractéristiques expérimentales des inverseurs à charge active saturée**

Dans cette partie nous présentons uniquement la réalisation de circuits inverseurs composé de deux OFETs en géométrie « top contact » à base de pentacène. Ces transistors présentent des performances qui sont dans la moyenne de celles rencontrées dans la littérature : les tensions seuils sont généralement élevées (entre -12 V et -15 V) et les mobilités sont de l'ordre  $10^{-2} \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ , comme nous l'avons déjà mentionné dans les études expérimentales du chapitre 2.

Les performances des inverseurs organiques à charge active saturée seront discutées en termes de géométrie des transistors (longueur du canal), d'épaisseur du pentacène et aussi de la morphologie du pentacène.

Pour chacune des étapes dans la réalisation de l'inverseur, seront extraites les caractéristiques physiques et électroniques utiles à la bonne compréhension des phénomènes mis en jeu.

#### IV.3.1. Inverseur avec deux transistors identiques

Dans un premier temps, nous utilisons deux transistors de même géométrie pour réaliser des inverseurs à charge active saturée. Pour tous les transistors, l'épaisseur du pentacène est de 50nm, la largeur du canal est de 4mm, l'épaisseur de l'isolant est de 1 $\mu$ m. Nous avons voulu tester l'effet de la longueur du canal pour cela nous avons relevé les caractéristiques de transfert d'inverseur avec des longueurs du canal  $L=50\mu\text{m}$  et  $L=100\mu\text{m}$  comme indiqué sur la figure 23.

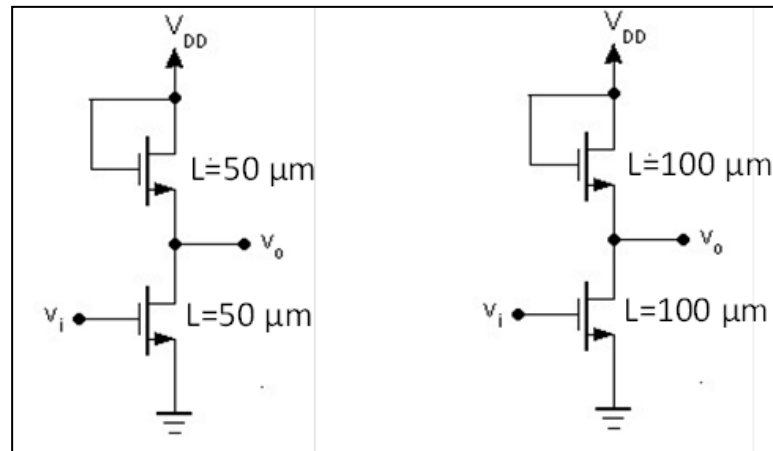
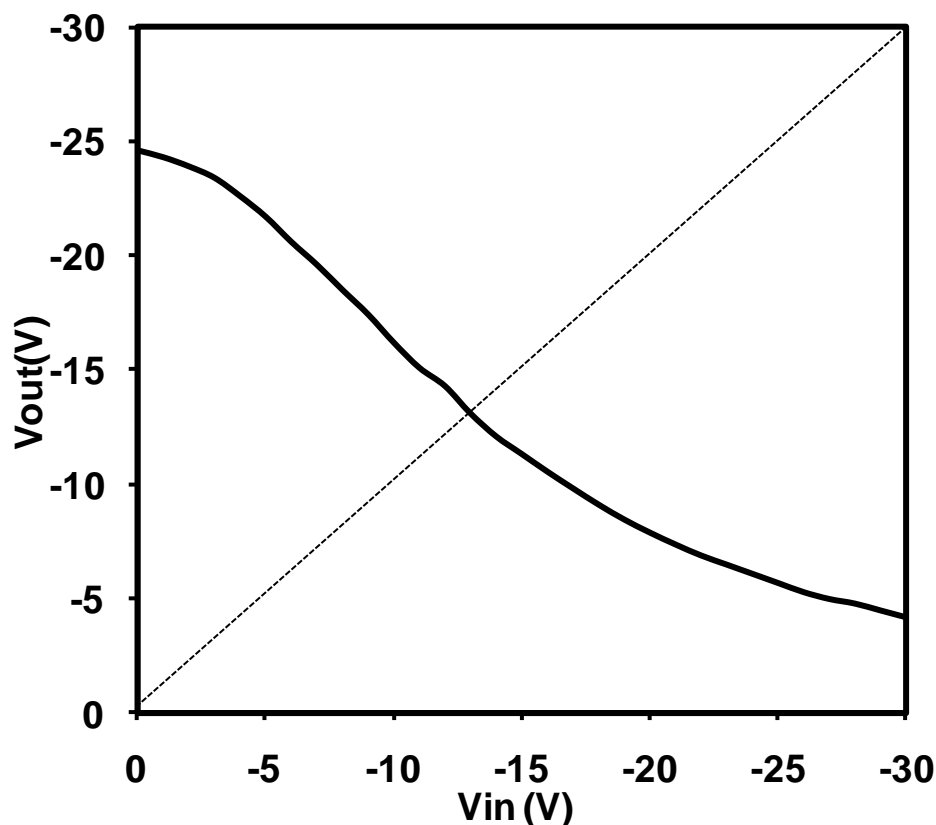


Figure 23 : Montages avec transistors identiques.

##### IV.3.1.a. Caractéristiques pour $L=50\mu\text{m}$

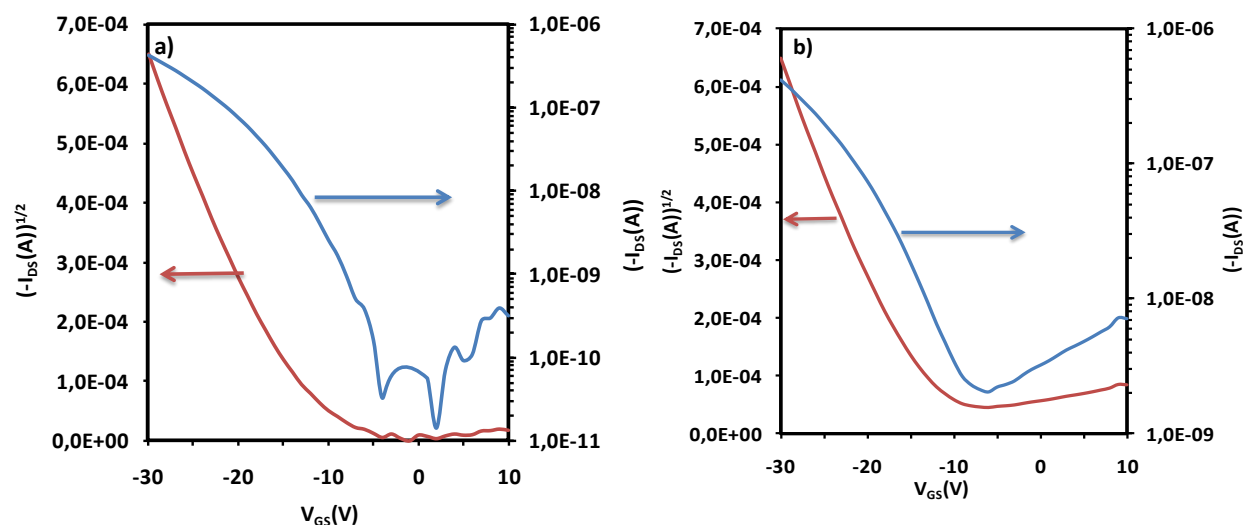
Dans la figure 24, nous présentons la caractéristique de transfert de l'inverseur avec deux transistors identiques  $L=50\mu\text{m}$  et une tension de polarisation de -30V. D'après cette courbe on détermine la tension de commutation ( $V_{IH} = -25\text{ V}$  et  $V_{IL} = -4,8\text{ V}$ ), et le gain maximum = 1,1. La tension de seuil pour l'inverseur est égale -14 V. On peut remarquer qu'il existe une faible marge de bruit sur l'état haut  $NM_H$  mais aucune à l'état bas comme la théorie le prévoit. Si le faible gain n'est pas étonnant de par le fait que le montage n'est absolument pas optimisé, il faut noter que le niveau bas est bien inférieur à  $V_{DD}/2$ .

Nous avons réalisé plusieurs inverseurs et nous avons du constater que c'était toujours le cas. Nous pouvons expliquer ce décalage au fait que le substrat n'est pas relié à la masse et au fait que les deux transistors, même s'ils sont identiques d'un point de vue géométrique ne présentent jamais les mêmes caractéristiques.



**Figure 24.** Caractéristique de transfert d'un inverseur à charge active saturée constitué de deux OTFT à base de pentacène et possédant des caractéristiques géométriques identiques dont  $L=50\mu m$ .

Pour illustrer le fait que deux transistors ne sont jamais rigoureusement identiques, nous avons volontairement coupé les métallisations permettant les connexions électriques et relevé les caractéristiques des deux transistors (figure 25).



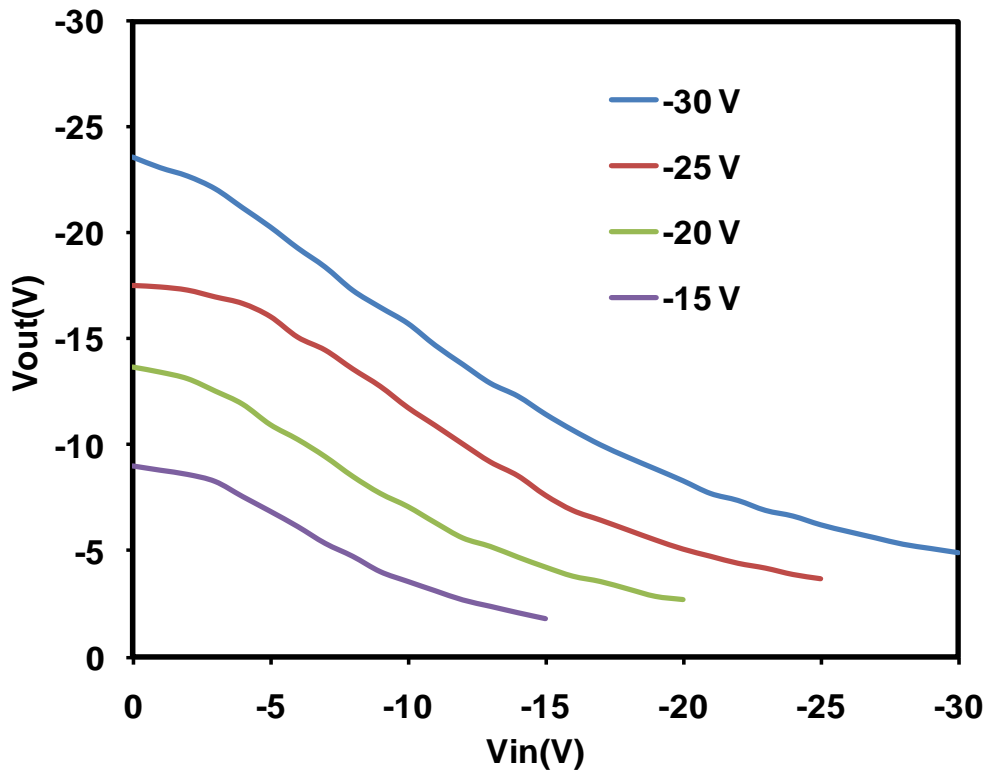
**Figure 25.** Caractéristiques de transfert a) du transistor de charge et b) du transistor de commande de l'inverseur avec  $L=50\mu\text{m}$ .

Si les caractéristiques ne sont pas fondamentalement différentes, nous pouvons noter qu'il existe une forte hystérésis différente suivant le transistor et également des courants de fuites sensiblement différents qui peuvent justifier en partie le décalage en tension.

	$V_{th}$ (V)	$I_{on}/I_{off}$	$\mu_{sat}$ ( $\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ )
Transistor de charge	-12	$\approx 10^5$	0,017
Transistor de la commande	-12	$\approx 10^4$	0,019

**Tableau 1.** Comparatif des caractéristiques électrique du transistor de charge et du transistor de commande.

Ensuite, nous avons fait varier  $V_{DD}$  pour étudier l'effet de la tension de polarisation sur les caractéristiques de transfert de l'inverseur. Nous présentons sur la figure 26 les caractéristiques de transfert pour différentes valeurs de  $V_{DD}$ . Comme toutes les études déjà publiées le prévoient, le gain de l'inverseur diminue avec la tension de polarisation (tableau 2). Pour les tensions  $V_{DD}$  inférieures à -15V l'inverseur ne fonctionne plus du fait qu'on se rapproche trop des tensions seuils des transistors voisins de -12V.



**Figure 26.** Caractéristiques de transfert suivant la tension de polarisation pour un inverseur à charge active saturée dont la longueur de canal est de 50 $\mu$ m.

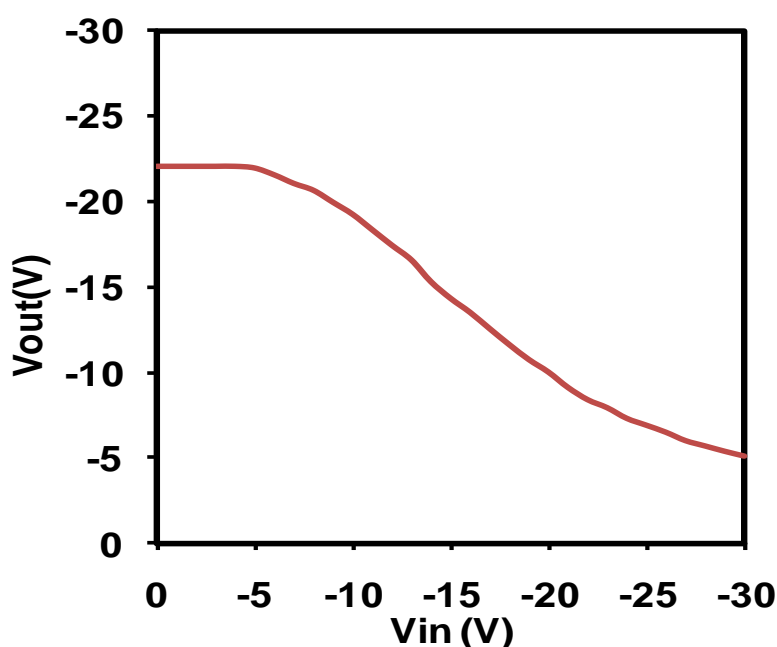
$V_{DD}(V)$	$V_{high}(V)$	$V_{low}(V)$	$A_{max}$	Tension seuil
-15	-9,8	-1,5	0,7	-7
-20	-15,6	-3	0,8	-9.5
-25	-17	-4	1	-11
-30	-25	-4,8	1,1	-14

**Tableau 2 :** Résumé des paramètres clés pour l'inverseur en fonction de tension des polarisations.



#### IV.3.1.b. Caractéristique pour $L=100\text{ }\mu\text{m}$

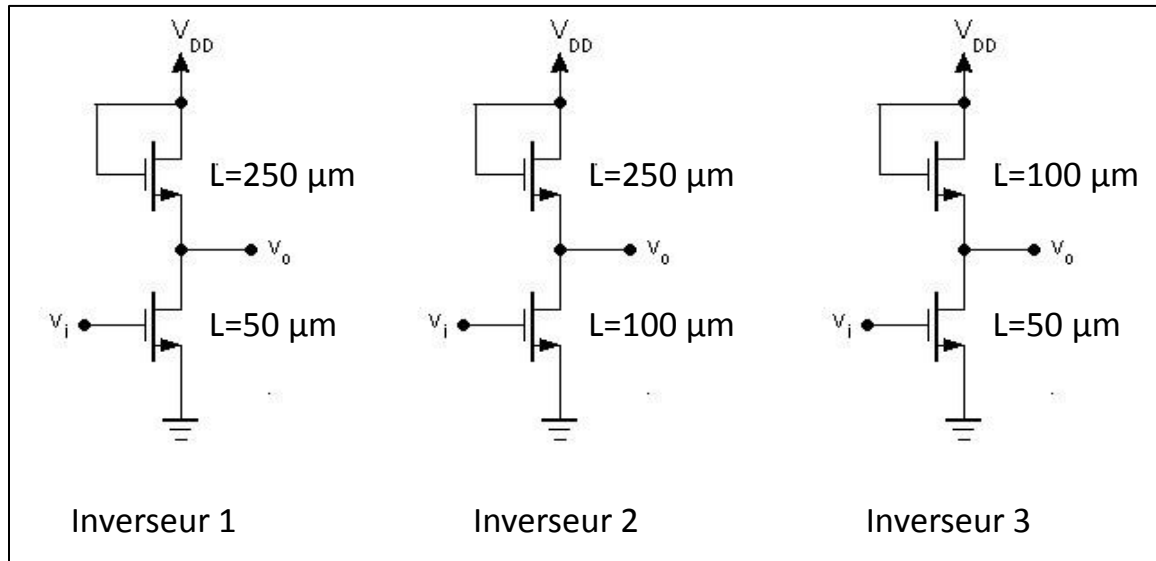
Nous présentons dans la figure 27 la caractéristique de transfert pour un inverseur dont les longueurs de canal des transistors sont de  $100\mu\text{m}$ . D'après cette courbe on trouve principalement que c'est la tension  $V_{OH} = -21,2\text{ V}$  qui est la plus affectée par l'allongement du canal et que la tension  $V_{OL}$  ne change pas. L'allongement de la longueur du canal a principalement pour effet d'augmenter (en valeur absolue) la tension seuil des transistors (la tension seuil passe de  $-12\text{V}$  à  $-14\text{V}$  environ). Pour une tension de polarisation de  $-30\text{V}$  on peut encore penser que les caractéristiques de chaque transistor justifient cette différence.



**Figure 27.** Caractéristique de transfert d'un inverseur à charge active saturée constitué de deux OTFT à base de pentacène et possédant des caractéristiques géométriques identiques dont  $L=100\mu\text{m}$ .

### IV.3.2. Inverseur avec deux transistors de longueurs de canal différentes

Pour diminuer le niveau bas de l'inverseur c'est-à-dire rapprocher de 0 la tension de sortie quand la tension d'entrée vaut  $V_{DD}$ , il faut dans le cas d'un inverseur à charge active saturée augmenter la longueur du canal du transistor de charge et diminuer celle du transistor de commande. En fonctionnement ceci revient à diminuer la résistance drain source du transistor de commande par rapport à celle du transistor de charge. On conservera dans cette partie les mêmes épaisseurs d'isolant et de pentacène que précédemment. Les trois montages de la figure 28 sont réalisés et testés. .

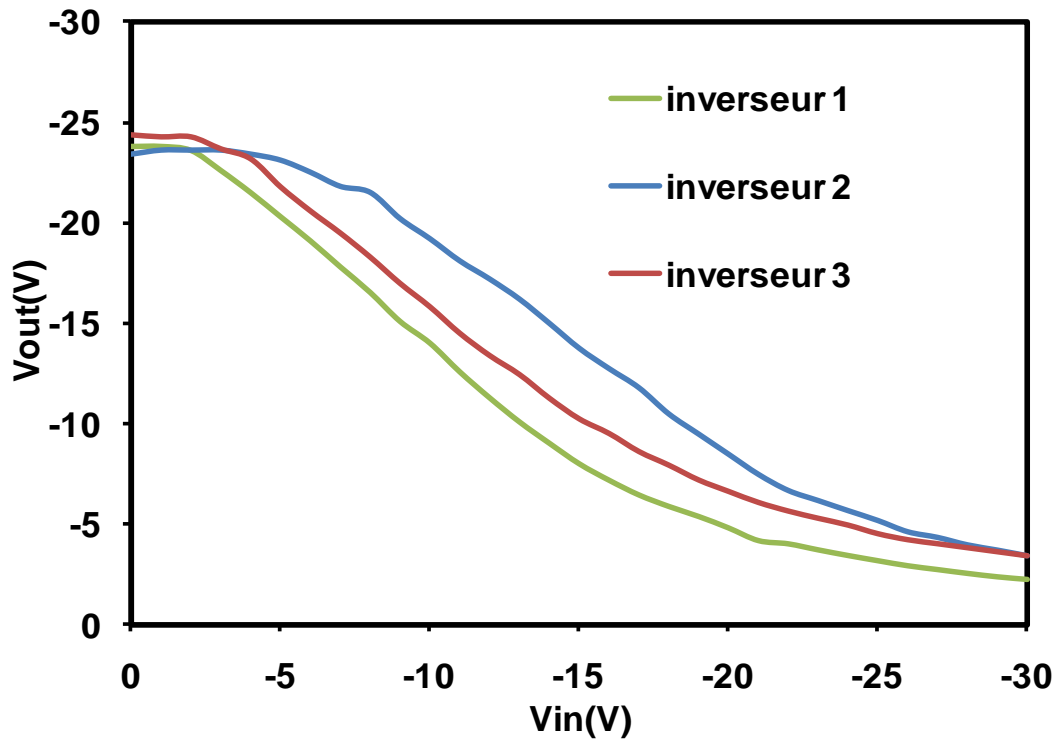


**Figure 28.** Montage inverseur avec des longueurs de canal différentes.

Les caractéristiques de transfert sont présentées dans la figure 29. Pour les trois inverseurs et pour une tension de polarisation  $V_{DD} = -30$  V nous remarquons que la tension de commutation  $V_{IH}$  est voisine de -25 V avec une perte de 16.6 % par rapport à la valeur idéal de  $V_{DD}$ . Le gain augmente avec l'augmentation du rapport  $L_{charge}/L_{commande}$  comme le montre les principaux paramètres pour les trois inverseurs présentés dans le tableau 3.

L'ensemble de ces résultats montrent que le rapport  $L_{charge}/L_{commande} = 5$  semble être un bon compromis pour obtenir des performances proches de celle trouvées dans la littérature [24,25]. Si la longueur du canal du transistor de charge est augmentée

(500 $\mu\text{m}$ ) les transistors ne fonctionnent plus et nous ne pouvons pas facilement diminuer plus la longueur du canal du transistor de commande car nous utilisons des masques ouverts et non de la lithographie pour définir la métallisation. Par conséquent, pour la suite de l'étude nous utiliserons deux transistors l'un de longueur de canal  $L = 50\text{ }\mu\text{m}$  (transistor de commande) et l'autre avec  $L = 250\text{ }\mu\text{m}$  (transistor de charge).



**Figure 29.** Caractéristique de transfert d'inverseur à charge active saturée en fonction des longueurs de canal .

inverseur 1 :  $L_{\text{charge}} = 250\mu\text{m}$  ;  $L_{\text{commande}} = 50\mu\text{m}$ . Inverseur 2  $L_{\text{charge}} = 250\mu\text{m}$  ;  $L_{\text{commande}} = 100\mu\text{m}$  et

Inverseur 3  $L_{\text{charge}} = 100\mu\text{m}$  et  $L_{\text{commande}} = 50\mu\text{m}$ .

	$V_{OH}(V)$	$V_{OL}(V)$	Amax	Tension seuil
Inverseur 1	-24	-2,1	1,4	-12,59 V
Inverseur 2	-23,4	-3,4	1,1	-13,57 V
Inverseur 3	-25	-3,5	1	-15,5 V

**Tableau 3.** Récapitulatif des propriétés des inverseurs en fonction des longueurs de canal.

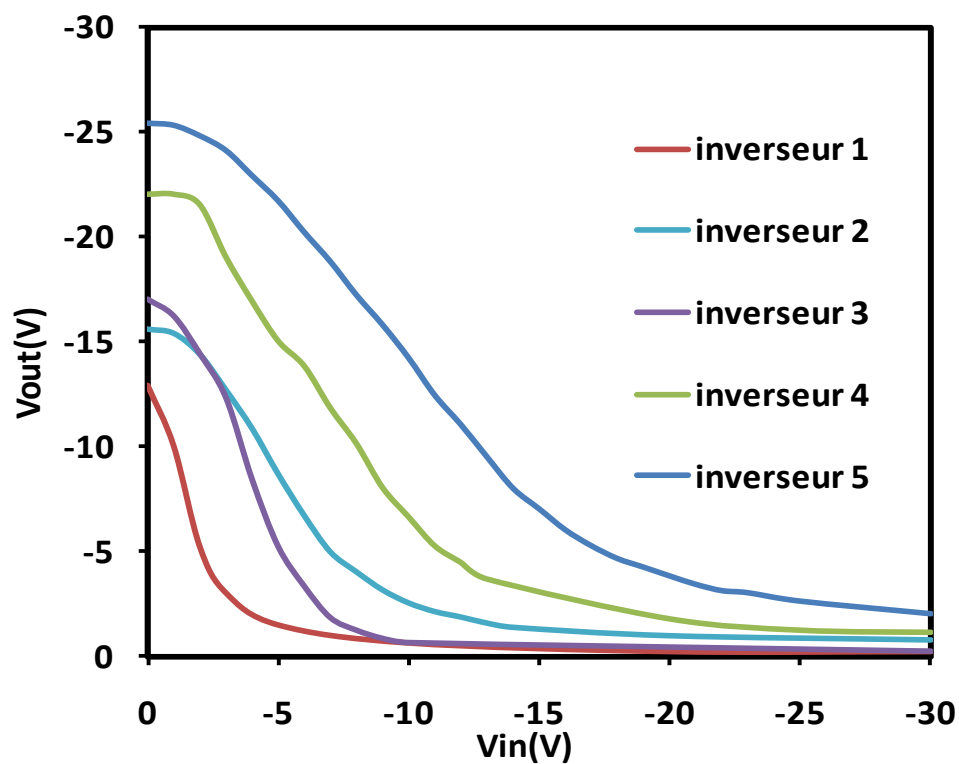
#### **IV.3.3. Etude en fonction de l'épaisseur de pentacène**

Dans cette partie nous réalisons les circuits inverseurs dont les caractéristiques géométriques sont présentées dans le tableau 4. L'idée est d'augmenter la résistance

drain source du transistor de charge (en particulier sous le seuil) en diminuant l'épaisseur de son canal et inversement pour le transistor de commande.

	Transistor de charge		Transistor de commande	
	Longueur du canal ( $\mu\text{m}$ )	Epaisseur de la couche active (nm)	Longueur du canal ( $\mu\text{m}$ )	Epaisseur de la couche active (nm)
Inverseur 1	250	20	50	50
Inverseur 2	250	25	50	50
Inverseur 3	250	20	50	100
Inverseur 4	250	25	50	100
Inverseur 5	250	50	50	100

**Tableau 4** Caractéristique géométrique et épaisseur de pentacène des inverseurs



**Figure 30.** Caractéristiques de transfert des inverseurs à charge active saturée pour lesquels  $L_{\text{charge}} = 250\mu\text{m}$  et  $L_{\text{commande}} = 50\mu\text{m}$  suivant les épaisseurs relatives de pentacène.

Dans la figure 30, nous présentons les caractéristiques de transfert pour les différents inverseurs avec deux transistors différents au niveau de longueur du canal et de l'épaisseur de la couche active. Le rapport de géométrie entre le transistor de charge et le transistor de la commande est égale à 5. Le tableau 5 ci après résume toutes les caractéristiques pour les inverseurs.

	$V_{OH}(V)$	$V_{OL}(V)$	$A_{max}$	Tension de seuil (V)
Inverseur 1	-12,9	-0,2	4	-3
Inverseur 2	-15,6	-0,8	2	-6,4
Inverseur 3	-17	-0,2	4	-6.9
Inverseur 4	-21,1	-1,1	1,8	-8
Inverseur 5	-25,4	-1	1,5	-12

Nous observons une augmentation remarquable du gain pour les deux inverseurs (1 et 3) pour lesquels l'épaisseur de la couche active est minimum en ce qui concerne le transistor de charge. Ce résultat est logique car nous sommes dans le cas le plus favorable où le transistor de charge a la longueur de canal la plus grande et une épaisseur de semi-conducteur la plus faible. Pour les autres inverseurs le gain maximum reste plus petit voisin de 2 mais le rapport de géométrie fait que la tension de commutation  $V_{OL}$  est pratiquement égale à 0 lorsque la tension sur l'entrée vaut -30 V (tension de polarisation de l'inverseur). On doit aussi remarquer que l'augmentation des performances du transistor de commande par rapport au transistor de charge entraîne un décalage de la caractéristique de transfert vers les tensions positives. Outre un changement significatif de la tension seuil et un déséquilibre total entre les marges de bruit, ceci entraîne aussi une forte diminution de la tension  $V_{OH}$ .

Ces transistors avec des paramètres géométriques très différents et pour lesquels les tensions de seuil des transistors de charge et de commande sont très différentes ( $-19 < V_T < -12V$ ), n'ont pas permis d'obtenir des inverseurs à charge à déplétion.

#### **IV.3.4. Etude en fonction de la vitesse de dépôt**

Dans cette partie nous avons étudié l'effet de la vitesse de dépôt sur le fonctionnement de l'inverseur à charge active saturée et donc sur la caractéristique de transfert de ce dispositif. Tous les résultats expérimentaux ont été obtenus jusqu'à maintenant avec une vitesse de dépôt de 6 nm/min. Ici nous donnerons les caractéristiques de transfert pour des inverseurs dont la couche active est déposée à la vitesse de 3 nm/min. L'inverseur a été réalisé à partir de deux transistors organiques avec le rapport  $L_{charge}/L_{commande} = 5$ .

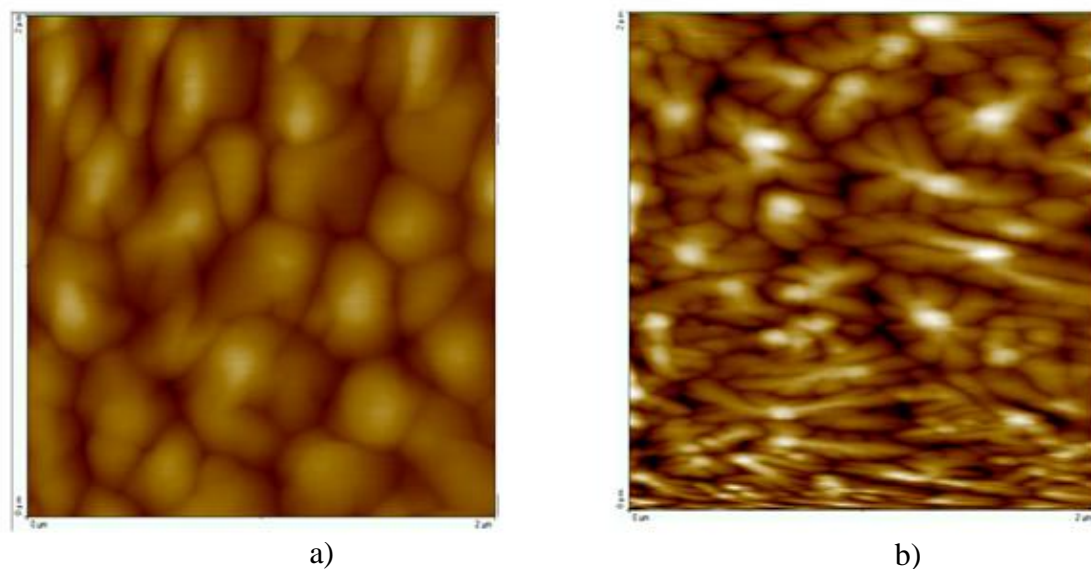
##### **IV.3.4.a. Analyses AFM**

La morphologie de la couche de pentacène dépend du substrat (rugosité, énergie de surface) mais surtout de la température du substrat [26] et de la vitesse de dépôt [27]. Dans la figure 31 nous présentons les images AFM d'une couche de pentacène de 25nm d'épaisseur évaporé, sur du PMMA à température ambiante, avec des vitesses de dépôt de 6nm/min et de 3nm/min.

Dans le cas où la vitesse de dépôt est de 6nm/min, on constate sur l'image AFM de la surface du pentacène, que, dans ces conditions, la croissance du pentacène ne se fait pas couche par couche. Il se produit une configuration pyramidale formée de terrasses dont la hauteur est identique à celle de la cellule cristalline du pentacène.

Dans le cas où la vitesse de dépôts est de 3nm/min la configuration n'est plus pyramidale mais dendritique.

Ces résultats sont bien en accord avec les travaux publiés par H. Yanakisawa [28] dans lesquels une étude sur la structure du pentacène en fonction des paramètre de dépôt est donnée.



**Figure 31.** Topographie AFM 2D ( $2\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$ ) d'une couche de pentacène de 25 nm sublimée sur une couche isolante de PMMA. a) pour vitesse de dépôt de 6-7 nm/min, b) pour un vitesse de dépôt de 3-4 nm/min.

#### IV.3.4.b. Caractéristiques des transistors

Nous avons tracé les caractéristiques de transfert des transistors de charge ( $L=250\mu\text{m}$ ) et de commande ( $L=50\mu\text{m}$ ) pour les vitesses de dépôt de 6 et 3 nm/min. les principales données résultant de ces caractéristiques sont donnée dans le tableau 6. On remarque immédiatement une nette amélioration de la mobilité qui est multipliée par 10 et aussi une augmentation de la tension seuil que l'on peut attribuer à moins de charges piégées à l'interface PMMA/pentacène (25 nm).

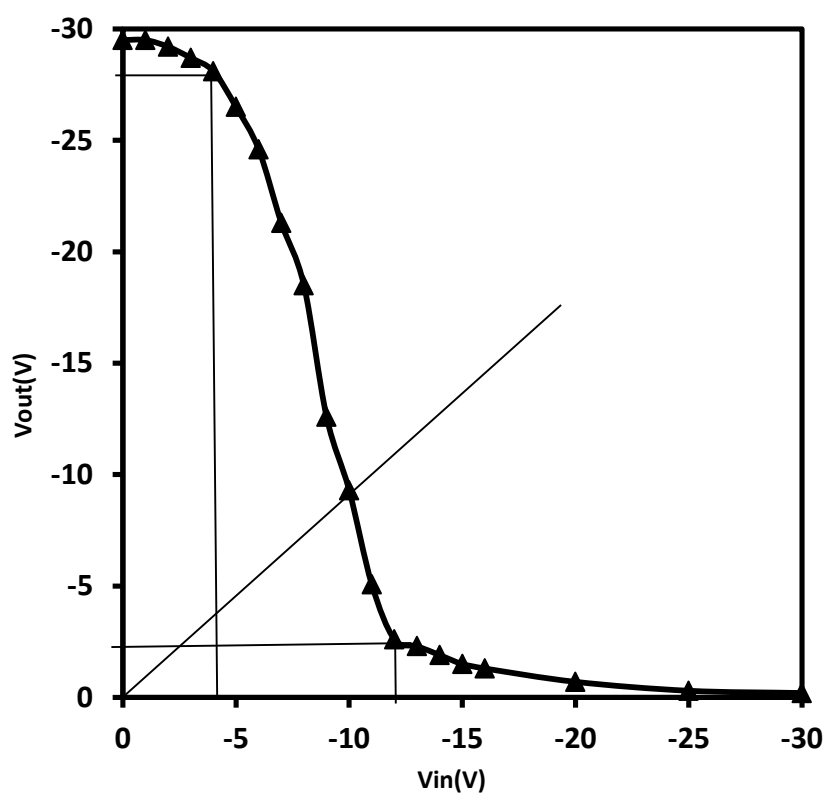
	Vitesse de dépôt nm/min	$V_{th}$ (V)	$I_{on}/I_{off}$	$\mu_{sat}$ ( $\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ )
Transistor de charge $L = 250\mu\text{m}$	6	-16	$10^3$	0.002
	3	-11	$10^2$	0.016
Transistor de commande $L = 50\mu\text{m}$	6	-14	$10^3$	0,001
	3	-12	$10^2$	0.019

**Tableau 6.** Les caractéristiques des transistors en fonction de vitesse de dépôt.

On notera que le fait de diviser l'épaisseur de pentacène par deux, engendre une chute de conductivité d'un ordre de grandeur, ordre de grandeur que l'on regagne en diminuant la vitesse de dépôt.

#### IV.3.4.c. Caractéristiques de l'inverseur avec vitesse de dépôt de 3nm/min

La caractéristique de transfert de l'inverseur avec  $L_{\text{charge}}/L_{\text{commande}} = 5$  et une vitesse de dépôt de 3nm/min est donnée sur la figure 32).



**Figure 32.** Caractéristique de transfert d'un inverseur pour lequel la couche de pentacène a été déposée à la vitesse de 3nm/min.

$V_{OH}(V)$	$V_{OL}(V)$	$V_{IL}(V)$	$V_{IH}(V)$	$V_{th}(V)$	Gain
-27.5	-2,5	-4,33	-12	-10	4

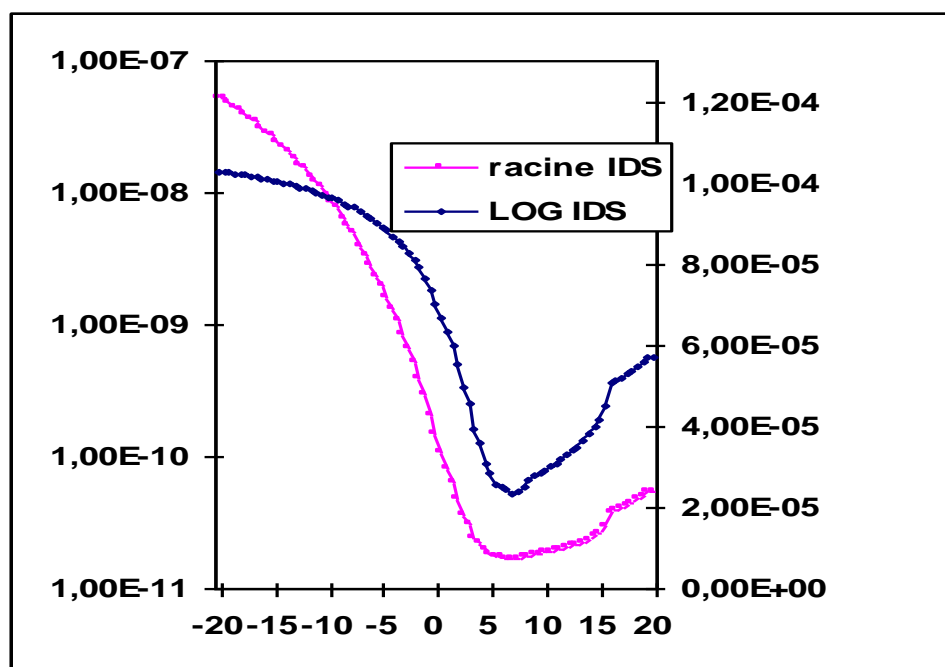
**Tableau 7.** Paramètres extrait de la caractéristique de transfert de la figure 32



Nous pouvons en extraire les paramètres du tableau 7. Pour une tension de polarisation de  $-30\text{V}$  la marge de bruit haut niveau est  $NM_H = |V_{OH} - V_{IH}| = 15,5\text{V}$  et la marge de bruit bas niveau est  $NM_L = |V_{OL} - V_{IL}| = 1,83\text{V}$ . C'est la première caractéristique où il est possible d'extraire tous les paramètres relatifs à la caractérisation d'un inverseur. Cela montre l'importance qu'il faut attacher à la fabrication des transistors organiques en particulier sur les conditions de dépôts qui vont ou non nous permettre d'obtenir un inverseur.

#### IV.4. Réalisation d'inverseurs organiques à charge à déplétion.

Pour obtenir un inverseur organique à charge à déplétion il faut que la tension seuil du transistor de charge soit positive ou très proche de 0. L'utilisation exclusive de PMMA comme isolant de grille ne nous a pas permis d'obtenir des tensions seuil plus grandes que  $-12\text{V}$ . Comme nous l'avons vu dans le paragraphe III-2 il existe plusieurs solutions pour décaler la tension seuil vers des valeurs positives. Nous avons choisi le remplacement le PMMA par le poly-4vinyl phénol (PVP) comme isolant de grille du transistor de charge.

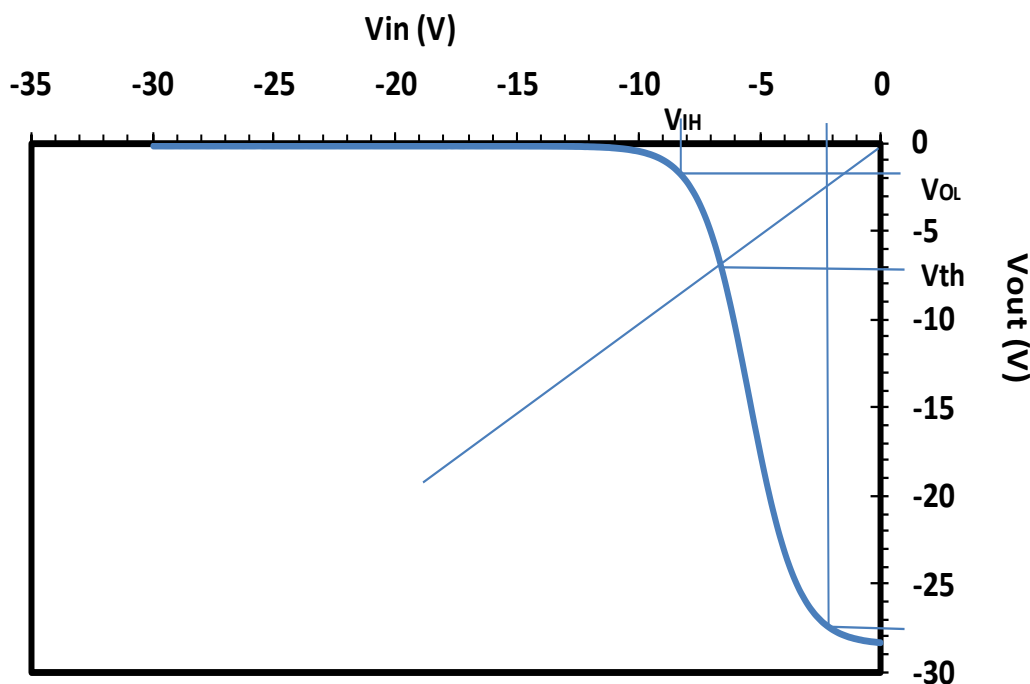


**Figure 33.** Caractéristique de transfert d'un transistor à base de pentacène pour lequel l'isolant de grille est du PVP,  $L=250\mu\text{m}$ , et l'épaisseur de pentacène est de  $50\text{nm}$ .

Comme le montre la figure 33, dans ce cas la tension seuil devient positive. Les caractéristiques du transistor sont moins bonnes en terme de mobilité. On perd un ordre de grandeur pour se retrouver à  $5.10^{-3} \text{ cm}^2.\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ .

Ce transistor associé à un transistor de commande avec un isolant PMMA ( $L=50\mu\text{m}$  ; épaisseur de pentacène 50nm) nous a permis d'obtenir un inverseur à charge à déplétion. Dans ce cas nous avons dû utiliser deux substrats différents car le PVP comme le PMMA s'étale à la tournette et nous ne possédons pas la technologie pour graver ces polymères. Les connections entre les transistors ont été assuré par des câbles électriques.

Les figures 34 et 35 donnent les caractéristiques de cet inverseur qui n'est malheureusement pas centré dans la plage -30, 0V. Ceci donne une tension seuil de -7V, une marge de bruit haute  $|NM_H|$  de 19,2V et une marge de bruit basse  $|NM_L|$  de seulement 0,3V. Cet inverseur pour avoir de bonnes caractéristiques nécessiterait seulement un étage supplémentaire pour décaler la tension seuil de -7V à -15V car le gain max de 7,1 est très correct surtout en considérant que le transistor à base de PVP est peu performant.



**Figure 34.** Caractéristique de transfert de l'inverseur à charge à déplétion.

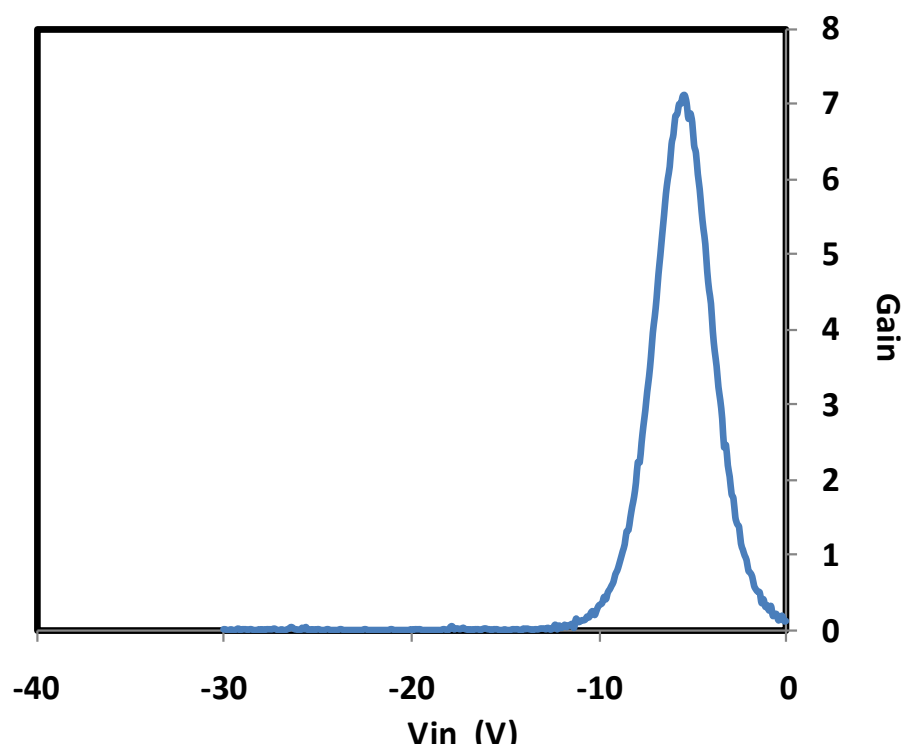


Figure 35. Gain de l'inverseur à charge à déplétion

## V. Conclusion

Dans ce chapitre après avoir présenté les différents types d'inverseur organique actuellement étudié, nous avons commencé la réalisation des transistors organiques à base de pentacène comme couche active et de PMMA comme isolant de grille dans la structure top contact. Nous avons ainsi réalisé des inverseurs à charge active saturée.

Une optimisation des paramètres tels que les longueurs respectives des transistors constituant l'inverseur ainsi que l'épaisseur du pentacène nous a permis d'obtenir des inverseurs avec des gains maximums de 4. Comme il est peu évident de faire mieux avec cette structure d'inverseur nous avons réalisé un inverseur à charge à déplétion en changeant l'isolant de grille du transistor de charge. Le gain est dans ce cas de 8 mais la caractéristique n'est pas symétrique. Nous envisageons maintenant la fabrication de O-CMOS mais jusqu'à maintenant les essais n'ont pas été couronné de succès.

## **VI. Références Bibliographiques**

[1] H. Klauk, D.J. Gundlach, T.N. Jackson IEEE Electron Device Letters 20, n°6, pp289 (1999)

[2] H. Klauk « organic electronics : materials, manufacturing and applications » (2006).

[3] H. Klauk, M. Halik, A. Zschieschang, F. Eder, G. Schmid and C. Dehm, “pentacene organic transistor and radio oscillators on glass and flexible substrates” Appl. Phys. Lett 82, 4175, (2003).

[4] S-H Lee, S-H. Kim, D-J. Choo and J. Jang, “ selective coating of PPE pentacene on TFT region for solution processed organic electronics”, Organic Electronics 11, 1268, (2010).

[5] K. Myny, M.J. Beenhakkers, N. A. J. M. Van Aerle, IEEE Journal of Solid State Circuits 46, 1223 (2011)

[6] C. Baek, S.M. Seo “Vertical organic inverter with stacked pentacene thin film transistors” Appl. Phys. 94, 153305, (2009).

[7] Cheon An Lee, Sung Hun Jin, Keum Dong Jung, Jong Duk Lee, Byung-Gook Park, Solid-state Electronics 50, 1216-1218 (2006)

[8] Ivan Nausieda, Kevin Kyungbum Ryu, David Da He, Akintunde Ibitayo Akinwande, Vladimir Bulovic and Charles G. Sodini, IEEE Transaction on Electron Devices, vol.57, n°11, 3027 (2010)

[9] Su-Ting Han, Ye Zhou, Zong-Xiang and V. A. L. Roy, Appl. Phys. Letters 101, 033306 (2012)

[10] A. Dodabalapur, J. Laquindanum, H.E. Katz and Z. Bao, Appl. Phys. Lett. 69, 4227 (1996)

- [11] Y.Y. Lin, A. Dodabalapur, R. Sarpeshkar, Z. Bao , Appl. Phys. Let. 74, 2714 **(1999)**
- [12] B. Crone, A. Dodabalapur, Y.Y. Lin, R.W. Filas, Z. Bao & al, Nature 403, 521**(2000)**
- [13] A.L. Briseno & al, Appl. Phys. Let. 89, 222111**(2006)**
- [14] H. Klauk, U. Zschieschang, J. Pflaum and M. Halik, Nature 445,745-748**(2007)**
- [15] T.H. Huang, H.C. Lai, B.J. Tzeng and Z. Pei, “Air stable organic complementary inverter with high and balance noise margin based on polymer/metal oxide hybrid gate dielectrics”, organic electronic 13, 1365, **(2012)**.
- [16] W.Y. Chou , B.L. Yeh, H-L. Cheng, B.Y. Sun, Y.C. Cheng, Y.S. Lin, S.J. Liu, F.C. Tang, C.C. Chang “Organic complementary inverters with polyimide films as the surface modification of dielectrics” Organic Electronics 10, 1001 **(2009)**.
- [17] W.Y. Chou, C.W. Kuo, H.L. Cheng, Y.R. Chen, F.C. Tang, F.Y. Yang, D.Y. Shu, C.C. Liao, “Effect of surface free energy in gate dielectric in pentacene thin-film transistors” Appl. Phys. Lett. 89, 112126, **(2006)**.
- [18] W.Y. Chou, C.W. Kuo, H.L. Cheng, Y.R. Chen, F.Y. Yang, D.Y. Shu, C.C. Liao, F.C. Tang, J. “High Mobility Pentacene Thin-Film Transistors on Photopolymer Modified Dielectrics” Appl. Phys. 45, 7922, **(2006)**.
- [19] Hagen Klauk, Marcus Halik, Ute Zschieschang, Florian Eder, Dirk Rohde, Günter Schmid and Christine Dehm, IEEE Transaction on electron devices vol.52, n°4, **(2005)**
- [20] Xiao-Hong Zhang, William J. Potscavage, Seungkeun Choi, and Bernard Kippelen, Appl. Phys. Lett. 94, 043312 **(2009)**

[21] J.B. Kim, C. Fuentes-Hernandez, D.K. Hwang, S.P. Tiwari, W.J. Potscavage Jr., B. Kippelen “Vertically stacked complementary inverters with solution-processed organic semiconductors” *Organic Electronics*, 12, 1132, **(2011)**.

[22] Sarita Yadav, Akanksha Sharma and Subhasis Ghosh *Appl. Phys. Lett.* 102, 093303**(2013)**

[23] Th. B. Singh, A-P. Senkarabacak, N. S. Sariciftci, A. Tanda, C. Lackner, R. Hagela, G. Horowitz “organic inverter circuits employing ambipolar pentacène field effect transistor” *Apl. Phys. Lett.* 89, 33512, **(2006)**.

[24] M. Fadlallah, G. Billiot, W. Eccleston, D. Barclay « DC/AC unified OTFT compact modeling and circuit design for RFID applications », *Solid-State Electronics*, 51, 1047, **(2007)**.

[25] S-H. Lee, S-H Kim, D.J Choo and J. Jong « selective coating of PPE pentacene on TFT region for solution processed organic electronics », *organic electronic*, 11 ,1268, **(2010)**.

[26] R.Ruiz, D.Choudhary, B.Nickel, T.Toccoli, K.-C. Chang, A.C. Mayer, P.Clancy,J.M. Blakely, R.L. Headrick, S.Iannotta, and G.G. Malliaras, *Chem. Mater.* 16,4497 **(2004)**.

[27] B.Stadlober, V.Satzinger, H.Maresch, D.Somitsch, A.Haase, H.Pichler, W.Rom,and G.Jakopic, *Proc. SPIE* 5217, 112 **(2003)**.

[28] H. Yanagisawa, T.Tamaki, M.Nakamura, and K.Kudo, *Thin Solid Films* 464-465,398 **(2004)**.



---

## Conclusion Générale

---

Ce travail de thèse porte sur la modélisation de transistors organiques et la réalisation de circuits logiques de type inverseur utilisant ces transistors. L'objectif de la simulation est d'analyser les comportements physiques des transistors organiques en prenant en compte les propriétés des matériaux organiques dans le logiciel de simulation et en agissant sur ces paramètres afin d'améliorer le fonctionnement de ces dispositifs, et par conséquent celui des circuits électroniques organiques.

Ce travail s'est déroulé suivant trois étapes principales. Dans un premiers temps, nous avons étudié le transport de charges dans le pentacène. Pour cela, nous avons commencé par des observations morphologiques de la couche de pentacène et la dépendance de son épaisseur sur la rugosité de surface et les zones inter-grains. Ensuite nous avons décrit les principaux mécanismes de transport et d'injection de charges (mécanismes d'interface, mécanismes de volume) qui gouvernent les processus de transport volumique dans les matériaux organiques. Nous avons poursuivi notre étude par la caractérisation de la structure sandwich (ITO/Pentacène/Al) selon deux méthodes :

- **la caractéristique de la densité de courant en fonction de la tension.** A partir de cette méthode, nous avons déterminé la mobilité du pentacène qui est de l'ordre de  $10^{-5} \text{ cm}^2/\text{V.s}$ , la densité des porteurs de charges qui est de l'ordre de  $10^{20} \text{ m}^{-3}$ , ainsi que la densité totale des pièges évaluée à  $3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . Ensuite, nous avons réalisé une étude en fonction de la température. A partir de cette étude, nous avons déterminé les mécanismes de transport qui interviennent lorsque la température augmente et nous avons calculé une énergie de pièges de l'ordre de 0,19 e.V.
- **la mesure par spectroscopie d'impédance.** Par cette méthode, nous avons pu montrer que la variation de la mobilité en fonction de la tension suit la



loi de Poole-Frenkel tandis que celle en fonction de la température suit des relations thermiquement activées.

Dans un second temps, nous avons cherché à simuler des transistors organiques à l'aide du logiciel commercial ATLAS de Silvaco. Tout d'abord, nous avons élaboré des transistors (OFET) à base de pentacène dont la structure est de type 'top contact'. Les performances de ce dispositif ont été étudiées en fonction de deux paramètres : l'épaisseur de la couche active et la longueur du canal. Nous avons trouvé que la mobilité s'améliore en fonction de l'épaisseur de la couche de pentacène. Ceci est dû à l'augmentation de la taille de grains et à la diminution des défauts (comme les joints de grains ou les dislocations). En ce qui concerne le deuxième paramètre, nous avons remarqué que la tension de seuil diminue avec la longueur du canal sans aucune modification de la mobilité de saturation.

Nous nous sommes aussi intéressés à l'étude des différents modèles physiques des transistors organiques via le logiciel de simulation ATLAS. Nous avons utilisé les paramètres du pentacène (énergie de gap, affinités électronique, densités des pièges...) trouvés expérimentalement et ceux de la littérature dans le logiciel afin d'étudier l'effet de ces paramètres sur le fonctionnement d'un transistor organique. Nous avons alors comparé les résultats issus de la simulation numérique avec les résultats expérimentaux et nous avons trouvé une bonne concordance aux niveaux des courbes de transfert et des paramètres électriques (mobilités, tension de seuil).

Enfin, dans un troisième temps, nous avons procédé à la réalisation d'un inverseur organique avec l'architecture « diode load inverter » basé sur l'association de deux transistors (en configuration top contact, à base de pentacène et avec du PMMA comme isolant de grille). Nous avons alors étudié l'influence de la longueur du canal et de l'épaisseur de la couche active des transistors de charges et de commande sur les caractéristiques électriques de l'inverseur. . Nous avons montré que les performances de ces dispositifs s'améliorent lorsqu'on diminue la vitesse de dépôt de la couche active. Les meilleures performances ont été obtenues lorsque les deux transistors ont une épaisseur de pentacène égale à 25 nm, une longueur de canal égale à 50  $\mu\text{m}$  et une vitesse de dépôt de 3 nm/min.

---

## **Annexe A – étude classique de l'absorption dipolaire Debye (ADD)**

---



Cette étude correspond aux phénomènes de relaxation diélectrique associés à l'orientation des dipôles permanents soumis à l'excitation produite par un champ électrique : l'orientation se fait avec un certain retard (déphasage dû à l'inertie des dipôles dont l'orientation est freinée par les frottements visqueux dans la matière) caractérisé par un temps de relaxation.

## **I. Forme de la polarisation en régime continu :**

Quand un champ  $E$  est appliqué à un diélectrique, les électrons puis les noyaux se déplacent presque instantanément car leur inertie (masse) est très faible et la polarisation ( $P_E + P_A$ ) par déformation est établie presque instantanément (polarisation électronique et atomique); il n'en est pas de même pour les dipôles permanents qui font intervenir la réorientation des molécules dans leur entier, ainsi que leurs interactions avec les voisines.

Pour résumer cette situation au bout d'un temps  $t$  très grand (régime statique), on peut donc écrire que la polarisation statique totale est la somme :

- d'une polarisation quasi-instantanée notée  $P_\infty$  (qui existe quelque soit la fréquence du champ appliqué, et égale à la somme des polarisations électronique et atomique),
- d'une polarisation statique dipolaire  $P_S$  (dipole) .

On a alors :  $P_S(\text{totale}) = P_\infty + P_S(\text{dipole})$ . En sachant que l'expression générale de la polarisation est  $P = (\epsilon - \epsilon_0)E$ , soit :  $P_\infty = (\epsilon_\infty - \epsilon_0)E$  et  $P_S(\text{totale}) = (\epsilon_s - \epsilon_0)E$ , on peut en déduire :  $P_S(\text{dipôle}) = P_S(\text{totale}) - P_\infty = (\epsilon_s - \epsilon_0)E - (\epsilon_\infty - \epsilon_0)E = (\epsilon_s - \epsilon_\infty)E$ .

## **II. Etude de la polarisation dipolaire en fonction du temps.**

Si on applique un champ  $E$  à l'instant  $t=0$ , la polarisation  $P_\infty = P_E + P_A$  va donc apparaître instantanément.

Comme au cours du temps les dipôles vont s'orienter, la polarisation à un instant  $t$  sera :

$$P(t) = P_\infty + P(\text{dipole}) = (\epsilon - \epsilon_0)E(t) \text{ d'où } P(\text{dipôle}) = (\epsilon - \epsilon_\infty)E.$$

Si on admet que la variation de la polarisation dipolaire est proportionnelle à son écart à sa valeur d'équilibre (ce qui revient à admettre que cette polarisation dipolaire varie avec le temps d'autant plus que son écart à sa valeur finale est grand), on peut écrire :

$$\frac{dP(\text{dipole})}{dt} = \frac{1}{\tau} (P_{S(\text{dipole})} - P_{(\text{dipole})}) \text{ avec } \tau : \text{temps de relaxation}$$

Comme  $P_{S(\text{dipole})} = (\epsilon_s - \epsilon_\infty)E$ , on a :  $\frac{dP(\text{dipole})}{dt} = \frac{1}{\tau} [(\epsilon_s - \epsilon_\infty)E - P_{(\text{dipole})}]$ .

Si on applique un champ alternatif sinusoïdal, on a alors :

$$\tau \frac{dP(\text{dipole})}{dt} + P_{(\text{dipole})} = (\epsilon_s - \epsilon_\infty)E_0 e^{j\omega t}$$

L'intégration de l'équation sans second membre conduit à :  $P_{(\text{dipole})} = C \exp(-\frac{t}{\tau})$ .

En appliquant la méthode de la variation de la constante, on trouve en reportant  $C \exp(-t/\tau)$  dans l'équation différentielle :

$$C'(t) = \frac{1}{\tau} (\epsilon_s - \epsilon_\infty)E_0 e^{\frac{1+j\omega\tau}{\tau}t} \text{ d'où : } C = \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)E_0}{1+j\omega\tau} e^{\frac{1+j\omega\tau}{\tau}t} + K.$$

Par conséquent :  $P_{(\text{dipole})} = K e^{-\frac{t}{\tau}} + \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)E_0}{1+j\omega\tau} e^{j\omega t}$ .

Le premier terme est caractéristique du régime transitoire et tend vers zéro lorsque  $t \rightarrow \infty$  ; le second correspond au régime permanent pour lequel  $P_{(\text{dipole})} = \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)E_0}{1+j\omega\tau} e^{j\omega t}$

### **III. Equations de Debye : diagramme d'Argand.**

#### **III.1. Formules de Debye :**

en identifiant avec  $P(\text{dipôle}) = (\underline{\epsilon} - \epsilon_\infty)E$  où  $\underline{\epsilon} = \epsilon' - j\epsilon''$ , on obtient :

$$\underline{\epsilon} = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{1+j\omega\tau} = \epsilon_\infty + \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)(1-j\omega\tau)}{1+\omega^2\tau^2}.$$

L'identification des parties réelles et imaginaires conduit aux équations de Debye dont on a indiqué la représentation graphique:

$$\begin{aligned}\varepsilon' &= \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + \omega^2 \tau^2} \\ \varepsilon'' &= \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \\ \tan \delta &= \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'} = \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \omega \tau}{\varepsilon_s + \varepsilon_\infty + \omega^2 \tau^2 (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}\end{aligned}$$

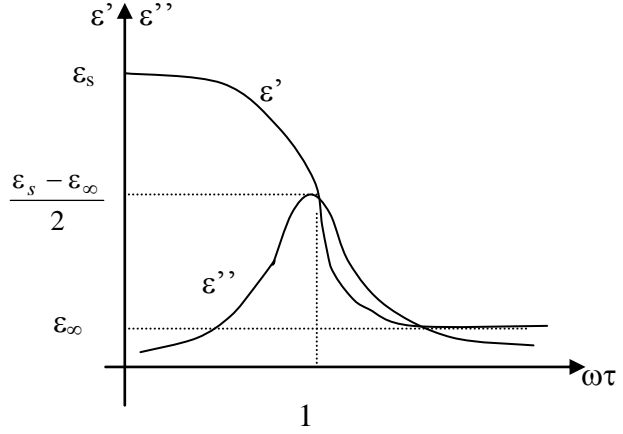


Figure 1

En se reportant au traitement par circuit équivalent, on constatera que les équations de Debye peuvent décrire un spectre de relaxation.

### III.2. Diagramme d'Argand (représentation de Cole et Cole).

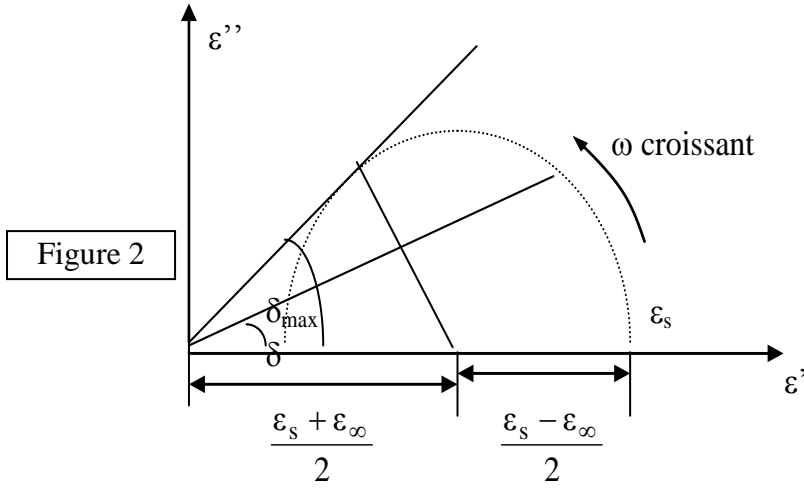
En réarrangeant convenablement les équations de Debye, Cole et Cole ont montré que la représentation de  $\varepsilon''$  en fonction de  $\varepsilon'$  est un cercle.

En effet, ces équations permettent d'écrire :  $(\varepsilon' - \varepsilon_\infty)^2 + (\varepsilon'')^2 = \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)^2}{1 + \omega^2 \tau^2}$  d'où l'on tire :  $(\varepsilon')^2 - \varepsilon'(\varepsilon_s + \varepsilon_\infty) + \varepsilon_s \varepsilon_\infty + (\varepsilon'')^2 = 0$ . Pour  $\omega = 0$  et  $\omega = \infty$ , on sait que  $\varepsilon'' = 0$  et que respectivement :  $\varepsilon' = \varepsilon_s$  et  $\varepsilon' = \varepsilon_\infty$ .

$$\text{Pour } \omega\tau = 1, \quad \varepsilon'' = \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{2} \quad \text{et} \quad \varepsilon' = \frac{\varepsilon_s + \varepsilon_\infty}{2}.$$

Dans le système d'axe  $x = \varepsilon'$ ,  $y = \varepsilon''$  on a donc les points de coordonnées :

$$((\varepsilon_s, 0), (\varepsilon_\infty, 0) \text{ et } (\frac{\varepsilon_s + \varepsilon_\infty}{2}, \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{2})).$$



Tous ces points sont répartis sur la courbe définie par l'équation précédente qui peut être réarrangée sous la forme :

$$\left[ x - \frac{(\epsilon_s + \epsilon_\infty)}{2} \right]^2 + y^2 = \left[ \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)}{2} \right]^2.$$

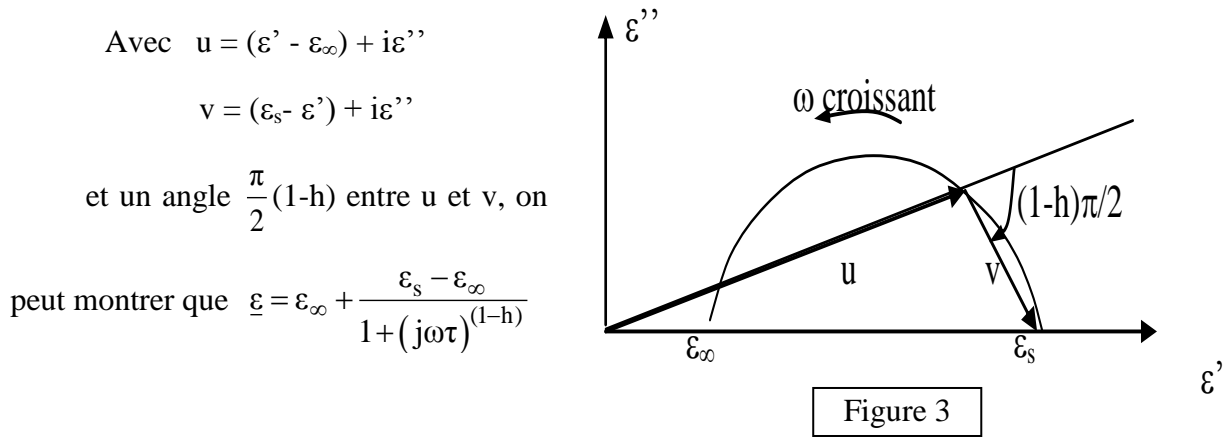
Cette courbe est un cercle dont le centre est le point  $(\frac{\epsilon_s + \epsilon_\infty}{2}, 0)$ , et de rayon  $\frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{2} \omega$ .

On a donc la représentation indiquée, avec  $\sin \delta_{\max} = \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{\epsilon_s + \epsilon_\infty}$ .

#### IV. Représentations pratiques.

De façon pratique, il est rare d'observer pour la représentation  $\epsilon'' = f(\epsilon')$  le demi-cercle issu directement des équations de Debye. En effet, dans un même diélectrique, il existe en général plusieurs types de dipôles, avec pour chacun un temps de relaxation, ou aussi pour un seul et même dipôle plusieurs mécanismes de relaxation (liés à différentes positions d'équilibre possibles pour le dipôle). Il en résulte une distribution des temps de relaxation avec une représentation  $\epsilon'' = f(\epsilon')$  qui n'est plus exactement un demi-cercle. Deux types de diagrammes peuvent être en réalité observés.

##### IV.1. Le demi-cercle aplati de Cole et Cole.



Le paramètre  $h$  ainsi introduit caractérise la distribution des temps de relaxation :  $h = 0$  redonne le demi-cercle de Debye, alors que  $h \rightarrow 1$  correspondrait à une infinité de temps de relaxation.

#### IV.2. L'arc oblique de Cole – Davidson.

Il traduit une asymétrie dans la distribution des temps de relaxation, avec une absorption « excédentaire » du côté des hautes fréquences. Ce comportement peut être représenté par l'équation  $\frac{\epsilon - \epsilon_\infty}{\epsilon_s - \epsilon_\infty} = \frac{1}{(1 + i\omega\tau)^\alpha}$ , avec  $0 < \alpha \leq 1$ . On peut montrer analytiquement que

$\frac{d\epsilon''}{d\epsilon'} = \tan \frac{\pi\alpha}{2}$ , d'où la définition géométrique de  $\alpha$  sur la figure représentant l'arc de Cole – Davidson.

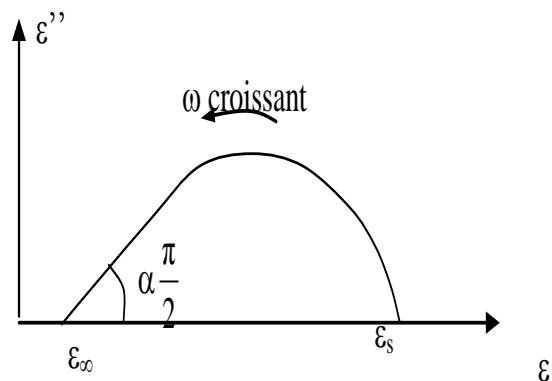


Figure 4



## **V. Discrimination pratique de l'influence de la conductivité due à des charges libres sur les pertes diélectriques d'origines dipolaire.**

Pour un tel diélectrique (milieu polaire avec charges libres résiduelles), la permittivité diélectrique est  $\varepsilon = \varepsilon' - i\varepsilon'' = \varepsilon' - i(\varepsilon''_{\text{dipolaires}} + \varepsilon''_{\text{libres}})$  ; on peut ainsi écrire :

- Soit  $\varepsilon = \varepsilon' - i(\varepsilon''_{\text{dip}} + \varepsilon''_{\ell})$ , d'où avec des pertes diélectriques de type absorption dipolaire Debye :  $\varepsilon = (\varepsilon' - i\varepsilon''_{\text{dip}}) + \varepsilon''_{\ell} = (\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}) \frac{\omega\tau}{1 + j\omega\tau} - j\frac{\gamma_0}{\omega}$  ; la représentation  $\varepsilon'' = f(\varepsilon')$  n'est plus un cercle mais présente la forme tracée sur la figure 5.

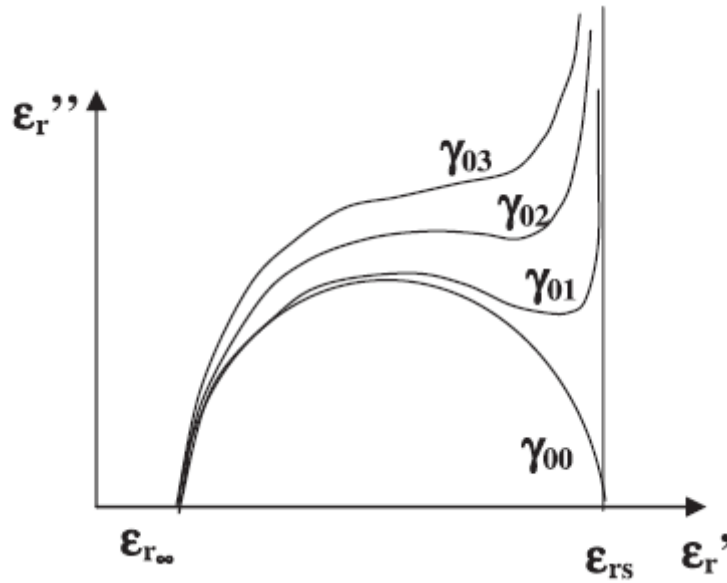


Figure 5 : Influence de la conductivité continue sur le diagramme  $\varepsilon'' = f(\varepsilon')$ .

- Soit  $\varepsilon'' = \varepsilon''_{\ell} + \varepsilon''_{\text{dip}}$ , et si les pertes diélectriques sont modélisées selon la théorie de Debye :

$$\varepsilon'' = \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty})\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} + \frac{\gamma_0}{\omega}$$

La représentation de  $\log \varepsilon''$  en fonction du logarithme de la fréquence permet de distinguer facilement la conductivité alternative associée à la relaxation dipolaire de la conductivité due aux charges libres.

En effet, de la relation précédente on peut déduire :

- Pour  $\omega\tau \ll 1$  :  $\varepsilon'' = \varepsilon_I'' \approx \frac{\gamma_0}{\omega}$  (région I)  

$$\Rightarrow \log \varepsilon_I'' = \log \gamma_0 - \log \omega \quad (ii)$$
- Pour  $\omega\tau \gg 1$  :  $\varepsilon'' = \varepsilon_{II}'' \approx \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}{\omega\tau}$  (région II)  

$$\Rightarrow \log \varepsilon_{II}'' = \log \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}{\tau} - \log \omega \quad (iii)$$
- Pour  $\omega\tau \approx 1$  :  $\varepsilon'' \approx \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}{2} + \gamma_0\tau \approx \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}{2}$ , car de façon pratique on a  

$$\gamma_0\tau = 10^{-18} \ll \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}{2} \approx 10^{-11}.$$

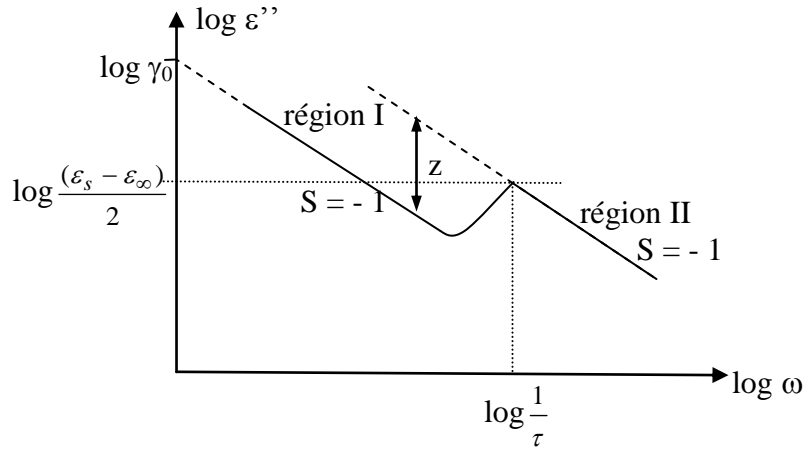


Figure 6 : Représentation  $\log (\varepsilon'') = f \log (\omega)$  permettant de déterminer le paramètre  $z$ .

Il en résulte les courbes :  $\log \varepsilon''_I = f(\log \omega)$  et  $\log \varepsilon''_{II} = f(\log \omega)$  qui ont une pente, égale à -1, que leur écart  $z = \log \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}{\gamma_0\tau}$  est indépendante de  $\omega$ ; cet écart permet au besoin

de déterminer  $\gamma_0$  : à partir des courbes  $\log \varepsilon'' = f(\log \omega)$  (figure 6), on peut obtenir  $\frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}{2}$  ainsi que  $\tau$ , et en reportant les valeurs  $(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)$  et  $\tau$  dans z on déduit  $\gamma_0$ .

### Références Bibliographiques :

- [1] R. Freymann et M. Soutif, La spectroscopie Hertzienne, Dunod, (1956).
- [2] A. Moliton, Applications de l'électromagnétisme dans les milieux matériels, Hermes, London-Paris, (2004).
- [3] C. J. F. Böttcher, P. Bordewijk, Theory of electric polarization, Vol I et II, 2nd ed., Elsevier (1973).
- [4] A. K. Jonscher, Dielectric relaxation in solids, Chelsea Press, (1993).



## **Résumé**

Les objectifs de ce travail de thèse concernent la modélisation de transistors organiques à base de pentacène et la réalisation de circuits électroniques de type inverseur. Dans ce contexte, nous avons étudié les mécanismes de transport de charges dans le pentacène par deux méthodes (I(V) et spectroscopie d'impédance) et déterminé les propriétés physiques du pentacène (mobilité, densité des pièges, niveau d'énergie des pièges...). Suite à cela, nous avons réalisé un transistor organique à effet de champ ayant une structure top contact en étudiant l'influence de la longueur du canal et de l'épaisseur de la couche active sur les performances de ce dispositif et en comparant les résultats avec ceux issus de la simulation via le logiciel ATLAS. Avec les paramètres extraits de l'étude des mécanismes de transport nous avons trouvé une bonne concordance entre les caractéristiques de sortie et de transfert expérimentales et simulées. Enfin, nous avons élaboré des inverseurs organiques à charge active saturée (diode-load inverter). L'optimisation des paramètres tels que la longueur du canal, l'épaisseur de la couche active et la vitesse de dépôt du pentacène a conduit à un gain en tension significatif en particulier en jouant sur la structure cristalline du pentacène. Un inverseur à charge à déplétion a été aussi caractérisé, en utilisant des isolants différents pour le transistor de charge et le transistor de commande un gain de 7 a été obtenu. Ces résultats ouvrent des perspectives et pourraient être améliorés en fabriquant des inverseurs en technologie O-CMOS.

**Mots clés** : pentacène, propriétés de transport, transistor organique, simulation, circuits inverseurs.

## **Abstract**

The objective of this thesis is the modeling of organic transistors based on pentacene and the realization of inverter electric circuits. In this context, we have studied charge transport mechanism in pentacene with two methods (I(V) and impedance spectroscopy) and we have determined the physical properties of pentacene (mobility, trap density, trap energy level...). After that, we have realized an organic field-effect transistor in "top contact" structure while studying the impact of the channel length and thickness of active layer on the performance of this device and while comparing the results with those obtained from the simulation carried out with ATLAS software. We have found a good concordance concerning output and transfer curves. Finally, we have developed organic inverters first in the "diode-load inverter" architecture. The optimization of parameters like the channel length, the thickness of the active layer and the deposition rate of pentacene has led to a significant voltage gain as we work on change in crystalline morphology. With dual threshold voltage OTFT organic inverter in depletion mode have been realize with gain around 7. These results open new perspectives and could be improved by manufacturing inverters in O-CMOS technology.

**Keywords**: pentacene, transport properties, organic transistor, simulation, inverter circuits.